



**KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH**

Institut für Festkörperforschung

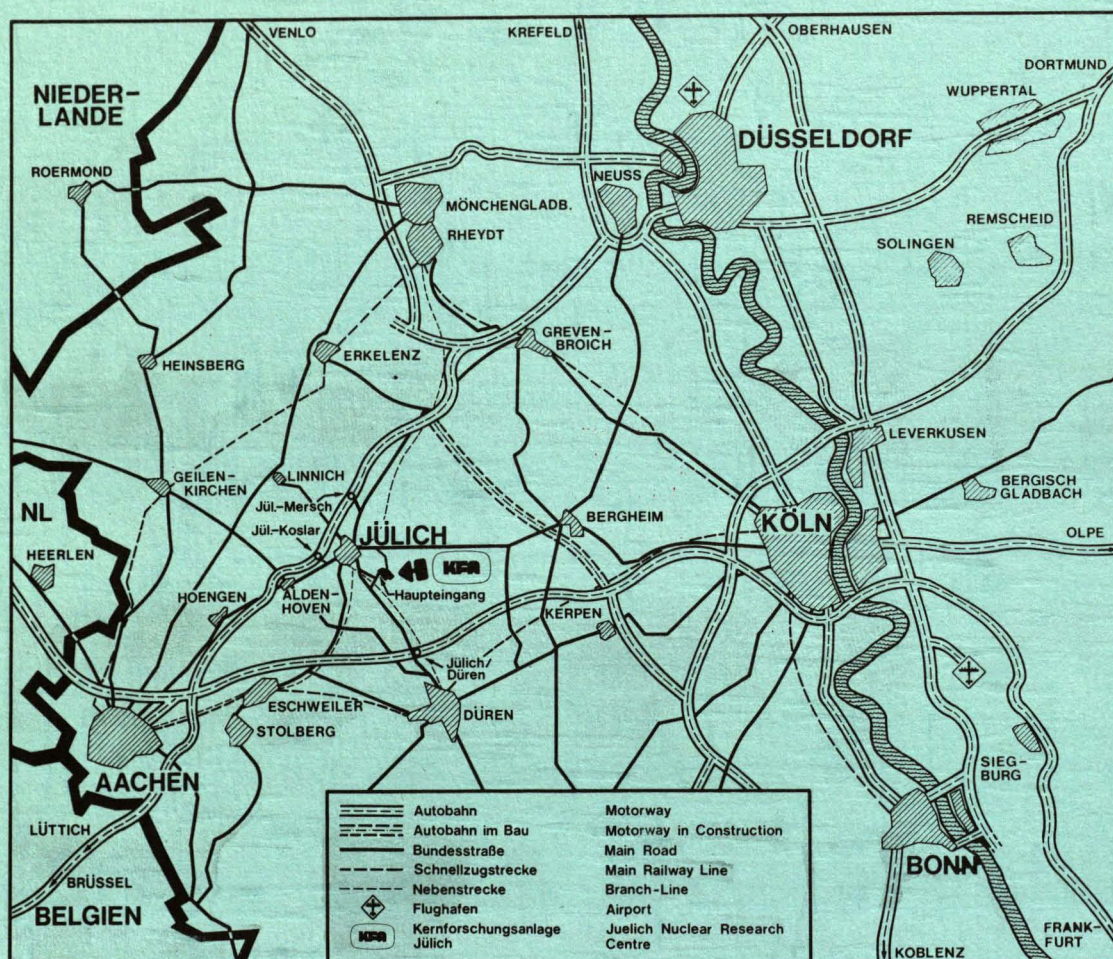
**Wachstum von Heliumbläschen  
in Typ 316 Edelstahl**

von

**J. Rothaut**

**Jül - 1781  
April 1982  
ISSN 0366-0885**





Als Manuskript gedruckt

## **Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 1781**

Institut für Festkörperforschung Jülich – 1781

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 024 61/610 · Telex: 833 556 kfa d



# **Wachstum von Heliumbläschen in Typ 316 Edelstahl**

von

**J. Rothaut**

D 82 (Diss. T.H. Aachen)

## Abstract

Foil specimens of solution annealed AISI 316 austenitic stainless steel were homogeneously helium implanted at room temperature. Subsequently the influence of helium concentration, external stress, annealing time and temperature on the growth of helium bubbles in the matrix was analysed by quantitative TEM investigation.

It was found, that after annealing at 1023 K for more than 1h all implanted helium has precipitated into visible bubbles. The observed time and helium concentration dependence of the mean bubble radius was in good agreement with bubble growth by an Ostwald ripening mechanism. Under this condition one can determine the activation energy of helium permeation from the temperature dependence of the mean bubble size. The observed value of 3.6 eV is also in good accordance with theoretical values and rules out bubble growth by migration and coalescence. After annealing under stresses in the range of 85 MPa a bimodal bubble size distribution was observed while under lower stresses and unstressed conditions the usual monomodal distribution was found. A possible explanation of this observation is a two stage nucleation process that involves two species of supersaturated and mobile components that is helium and vacancies generated by creep deformation in excess of their thermal equilibrium concentration. An influence of external stress on the growth mechanism of helium bubbles was not observed since the time dependence of the mean bubble radius was similar to the unstressed condition.

## Gliederung

|   | Seite |
|---|-------|
| I. Einleitung   | 1     |
| II. Experimente   | 4     |
| 1. Proben   | 4     |
| 2. Heliumimplantation   | 4     |
| 3. Kriechtests und Anlassen unter Spannung  | 6     |
| 4. Elektronenmikroskopie und Auswertung   | 8     |
| III. Ergebnisse   | 11    |
| 1. Ergebnisse der Kriechtests   | 11    |
| 2. Untersuchung der He-Blasen   | 14    |
| 2.1. He-Blasen an Korngrenzen   | 15    |
| 2.1.1. TEM-Untersuchungen   | 16    |
| 2.1.2. SEM-Untersuchungen   | 17    |
| 2.2. Einfluß von Spannung und Zeit auf Blasen-<br>größe, -verteilung und -dichte in der<br>Matrix | 19    |
| 2.2.1. Blasenwachstum ohne Spannung   | 19    |
| 2.2.2. Einfluß der Spannung   | 21    |
| 2.2.3. Dichte der Heliumblasen  | 26    |
| 2.3. Abhängigkeit von der Heliumkonzentration   | 28    |
| 2.4. Temperaturabhängigkeit und Aktivierungs-<br>energie  | 30    |
| IV. Diskussion  | 32    |
| 1. Kriechtests und Blasen an Korngrenzen  | 32    |
| 2. Keimbildung der Heliumblasen   | 34    |
| 2.1. Keimbildung ohne äußere Spannung   | 34    |
| 2.2. Einfluß von Spannung auf die Keimbildung   | 34    |

|  | Seite |
|--|-------|
| 3. Wachstum der Heliumblasen                 | 36    |
| 3.1. Wachstumsmodelle                        | 37    |
| 3.1.1. Ostwaldreifung                        | 37    |
| 3.1.2. Modelle für Balsewanderung            | 39    |
| 3.2. Vergleich mit experimentellen Daten     | 44    |
| 3.3. Vergleich mit Messungen anderer Autoren | 50    |
| V. Zusammenfassung                           | 52    |
| VI. Anhang (Proben- und Datenübersicht)      | 54    |
| VII. Literaturverzeichnis                    | 56    |



## 1. Einleitung

Die innere Wand und die das Plasma umgebenden Strukturmaterialien eines zukünftigen Fusionsreaktors werden neben hohen mechanischen Spannungen und Wechselbelastungen einem sehr hohen Fluß von energiereichen Neutronen ausgesetzt sein. Aufgrund des hohen Anteils von 14 MeV Neutronen, die bei der Fusion entstehen, wird das Neutronenspektrum wesentlich härter sein als in herkömmlichen Spalt- oder schnellen Brutreaktoren. Infolge des großen  $(n, \alpha)$  Wirkungsquerschnitts der 14 MeV Fusionsneutronen kommt es somit zu hohen Helium-Produktionsraten. Während die Heliumproduktion in Edelstahl im schnellen Brüter bei etwa 10 appm pro Jahr liegt /1/, wird sie in einem zukünftigen Fusionsreaktor bis zu 500 appm pro Jahr betragen /2/.

Untersuchungen über den Einfluß von Strahlenschäden und Helium auf Wand- und Strukturmaterialien (z.B. Edelstähle) wurden im Rahmen der Entwicklung des schnellen Brutreaktors in großem Umfang durchgeführt (z.B. /3/). Schwerpunkt dieser Arbeiten war allerdings zumeist die Änderung der mechanischen Eigenschaften unter Bestrahlung wie z.B. Duktilitätsverlust und Verringerung der Standzeit. Die Bestrahlung erfolgte im allgemeinen mit Neutronen im Reaktor.

Für die Vorhersage von Materialveränderungen unter den Bedingungen eines zukünftigen Fusionsreaktors sind diese Ergebnisse jedoch nur bedingt verwendbar, da aufgrund des großen Anteils hochenergetischer Neutronen die Heliumproduktion im Vergleich zur Strahlenschädigung eine weitaus bedeutendere Rolle spielt als in Brut- oder gar LW-Reaktoren. Aus diesem Grunde geht man vielfach davon aus, daß die Betriebszeit eines zukünftigen Fusionsreaktors neben Schwellen und bestrahlungsinduziertem Kriechen nicht unbedeutend durch die heliumbedingten Materialveränderungen begrenzt sein wird.

Aufgrund seiner außerordentlich geringen Löslichkeit /4,5/ scheidet sich das Helium in Blasen aus, die als Ursache für die Hochtemperatur-Heliumversprödung und die dadurch bedingte z.T. drastische Verringerung der Standzeit angesehen werden können /6/.



Aus diesem Grunde ist ein grundlegendes Verständnis sowohl der Keimbildung wie auch der Wachstumsmechanismen von Heliumblasen in Metallen von grundlegender Bedeutung für die Auswahl bestehender und die Entwicklung zukünftiger Werkstoffe.

Eine Reihe von theoretischen Untersuchungen befaßt sich mit möglichen Wachstumsmechanismen von Gasblasen in Festkörpern /7,8,9,10,11,12,13,14,15/, nach denen Blasen durch drei unterschiedliche Prozesse wachsen können: a) durch Reifung infolge von in Lösung gehen von Gas aus kleinen Blasen und anschließendes Ausscheiden in größeren (Ostwaldreifung), b) durch Wanderung und Koagulation beweglicher Bläschen und c) durch Agglomeration von Helium und/oder Leerstellen an unbeweglichen Blasen.

Experimentell wurde die Kinetik des Blasenwachstums an Spaltgasblasen in Uranoxid ( $UO_2$ ) /16,17,18/ und an einer Reihe von Metallen und Legierungen wie z.B. Cu /19/, Nb /20,21,22/, V /23,24/ und auch an Edelstählen /25,26,27,28/ untersucht. Als Wachstumsmechanismus wurde von den meisten Autoren entweder durch direkte Beobachtung im Elektronenmikroskop (z.B. /18,19,24,28/) oder indirekt aus dem zeitlichen Wachstum der Blasen (z.B. /23,25,26/) auf Blasenwanderung und Koagulation geschlossen. Eine Untersuchung über den Einfluß von äußerer Spannung auf das Blasenwachstum ist nur aus einer Arbeit bekannt /25/.

Obwohl als unmittelbare Ursache für die Helium-Hochtemperaturversprödung die Blasen in den Korngrenzen angesehen werden /29/, ist das Hauptziel der vorliegenden Arbeit eine Untersuchung an Blasen in der Matrix. Dies hat folgende Gründe: Erstens sind quantitative experimentelle Daten über Heliumbläschen überhaupt so spärlich, daß es sinnvoll erschien, diese Lücke mit einer mehr Grundlagenorientierten Arbeit aufzufüllen zu beginnen. Bevor die Vorgänge in der Matrix nicht einigermaßen verstanden sind, ist kaum zu hoffen, die Bläschenbildung in den sehr komplexen Korngrenzenstrukturen theoretisch beschreiben zu lernen. Zweitens beeinflussen die Matrixbläschen die Versprödung indirekt in entscheidender Weise, da sie (a) zu einer Verfestigung der Matrix führen können und (b) ihre Dichte in der Matrix den Anteil des Heliums mitbestimmt, der in die Korngrenzen gelangen kann.

Aus diesem Grunde wurde in dieser Arbeit das Wachstum von Heliumblasen in der Matrix von kommerziellem Edelstahl (Typ AISI 316) nach Heliumimplantation bei Raumtemperatur systematisch untersucht. Dazu wurde die Abhängigkeit der Größenverteilung und der Dichte der Heliumblasen von Anlaßtemperatur und -zeit sowie von der angelegten Spannung und der Heliumkonzentration experimentell bestimmt.

Nach der Beschreibung einiger experimentellen Details soll in Abschnitt III der Einfluß der oben angeführten Parameter auf die Blasengröße und die Art der Größenverteilung dargestellt werden. Außerdem werden die Ergebnisse von Kriechtests und qualitative Beobachtungen von Heliumblasen an Korngrenzen vorgestellt.

In der sich anschließenden Diskussion wird besonders auf den Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit bestehenden Wachstumsmodellen eingegangen. Außerdem wird die nach dem Anlassen implantierter Proben unter Spannung beobachtete bimodale Blasenverteilung anhand eines von Trinkaus /30/ entwickelten Modells auf Zweikomponenten-Keimbildung zurückgeführt.

## II. Experimente

### 1. Proben

Als Ausgangsmaterial für die Proben dienten 100  $\mu\text{m}$  dicke Folien aus kommerziellem Edelstahl (Typ AISI 316) der Fa. Hamilton Technology Inc. Die vom Hersteller angegebene chemische Zusammensetzung des Materials ist in Tabelle 1 aufgeführt. Aus den Folien wurden mittels Funkenerosion Kriechproben mit einer Meßlänge  $l_0$  von 6 mm und einer Breite  $b$  von 2 mm geschnitten. Nach sorgfältiger Reinigung wurden die Proben 2 Stunden lang bei 1323 K in einem Vakuum von  $\sim 10^{-4}$  Pa lösungsgeglüht und anschließend schnell abgekühlt. Ein nachfolgendes Ausscheidungsglühen für 24 h bei 1073 K sollte eine möglichst stabile Struktur von  $\text{M}_{23}\text{C}_6$ -Ausscheidungen erzeugen [31]. Auf diese Weise konnte erreicht werden, daß Proben, die nach der Heliumimplantation für sehr unterschiedliche Zeiten (1-1000 h) und bei unterschiedlichen Temperaturen (975-1075 K) getempert worden waren, sich nur unbedeutend in ihrer Ausscheidungsstruktur unterschieden. Die mittlere Korngröße nach dieser Wärmebehandlung betrug etwa 30  $\mu\text{m}$ .

Tabelle 1:

Chemische Zusammensetzung des verwendeten Materials (Gew. %)

| Ni    | Cr    | Mo   | Fe  | Mn   | Si   | C     | S     | P     |
|-------|-------|------|-----|------|------|-------|-------|-------|
| 11.43 | 17.35 | 2.24 | bal | 0.89 | 0.59 | 0.048 | 0.019 | 0.031 |

### 2. Heliumimplantation

Die Beladung der Proben mit Helium erfolgte am Kompaktzyklotron der KFA Jülich. Implantationskammer und Strahlführungssystem sind in Abb. 1 skizziert. Die Energie der vom Zyklotron erzeugten 28 MeV  $\alpha$ -Teilchen wurde durch Vorschalten eines rotierenden Degraderrades auf 24 geeignet abgestufte Energien mit unterschiedlichen Eindringtiefen reduziert. Die einzelnen Tiefenprofile hatten etwa die Form einer Gauss-Verteilung mit einer Halb-



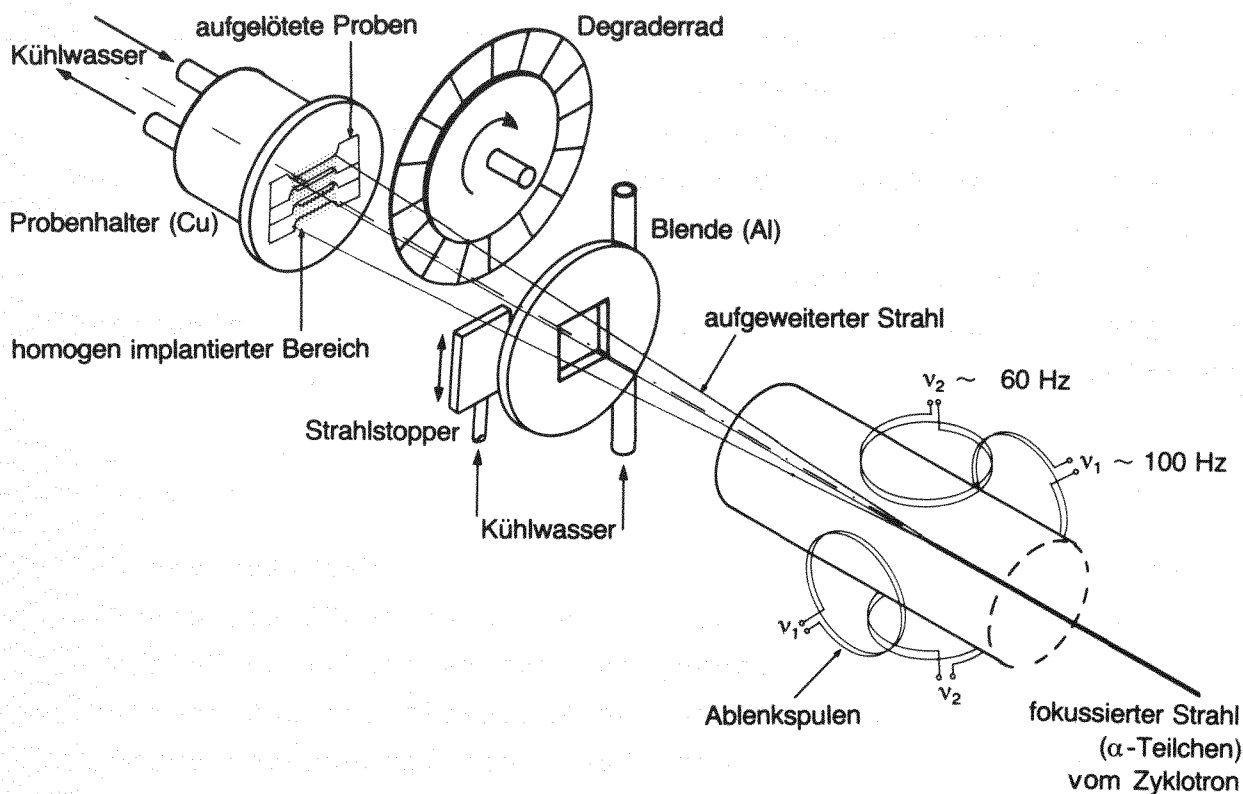


Abb. 1:  
Aufbau der Implantationskammer

wertsbreite zwischen 4 und 4.5  $\mu\text{m}$  /26,32/. Aufgrund der unterschiedlichen Eindringtiefen der 24 Energien ergab sich eine Überlappung der einzelnen Profile, so daß eine homogene Verteilung des Heliums über die Probendicke erreicht wurde. Der Energiede-  
grader bestand aus 24 über dem Umfang des Rades angebrachten Al-Folien unterschiedlicher Dicke, in denen die 28 MeV  $\alpha$ -Teilchen auf die jeweils benötigte Energie abgebremst wurde.

Eine homogene Verteilung der Heliumkonzentration über die Probenfläche wurde erreicht, indem der  $\alpha$ -Strahl durch zwei Paare von Ablenkspulen mit einer Frequenz von etwa 80-100 Hz horizontal und vertikal über die Probenfläche bewegt wurde. Auf diese Weise konnte eine Fläche von etwa 1  $\text{cm}^2$  homogen bestrahlt werden.

Jeweils drei Proben waren nebeneinander mit Indiumlot auf einem Cu-Probenhalter montiert und konnten gleichzeitig implantiert werden. Der Probenhalter war wassergekühlt, wobei durch das Indiumlot ein guter Wärmekontakt zu den Proben bestand. Um Fehler durch die beim Abbremsen im Degraderrad auftretende Strahlauf-

weitung zu vermeiden, waren die Proben unmittelbar hinter dem Degraderrad montiert, wobei der Probenhalter gleichzeitig als Faradaykäfig diente, um den Strahlstrom zu messen. Die Implantation erfolgte im Vakuum. Die implantierte Heliumkonzentration wurde über die zeitliche Integration des Strahlstroms bestimmt; sie betrug zur Untersuchung der Zeit-, Spannungs- und Temperaturabhängigkeit 100 appm, zur Untersuchung der He-Konzentrationsabhängigkeit variierte sie zwischen 10 und 300 appm.

### 3. Temperung und Kriechtests

Um den Einfluß von Spannung und Zeit auf das Wachstum von Heliumblasen untersuchen zu können, wurden Proben benötigt, die einmal bei einer vorgegebenen Spannung für unterschiedliche Zeiten beziehungsweise für eine vorgegebene Anlaßzeit bei unterschiedlichen Spannungen geglüht wurden. Für diese Temperungen unter äußerer Spannung standen Kriechmaschinen zur Verfügung, in denen die gewünschte Spannung über einen Federmechanismus aufgebracht wird, der auch bei Kriechverformung der Probe eine konstante äußere Spannung gewährleistet /33/. Die Probe befand sich dabei im Hochvakuum  $< 10^{-4}$  Pa; die Temperatur wurde durch ein Thermoelement in Probennähe kontrolliert; die Probenheizung erfolgte von außen durch einen vertikalen Rohrofen. Temperatur und Längenänderung der Probe wurden über den gesamten Temperzeitraum mit einem Mehrkanalschreiber registriert. Die gewünschte Spannung wurde 15' nach Erreichen der Testtemperatur angelegt.

Die Glühungen ohne äußere Spannung erfolgten ebenfalls unter Hochvakuum ( $< 10^{-4}$  Pa) in einem Temperofen. Die Temperaturmessung erfolgte durch ein in der Nähe der Probe angebrachtes Thermoelement, wobei, wie auch bei den Kriechmaschinen, über den gesamten Temperzeitraum eine Temperaturkonstanz von  $\pm 2$  K erreicht wurde.

Um die Anzahl der benötigten Proben zu begrenzen, wurde folgender Versuchsablauf gewählt, der anhand von Abb. 2 illustriert ist. Zunächst wurde mit einer Reihe von mit 100 appm Helium implantierten Proben bei 1023 K die Abhängigkeit der Bruchzeit  $t_p$  von der angelegten Spannung  $\sigma$  bestimmt (schwarze, gefüllte Kreise

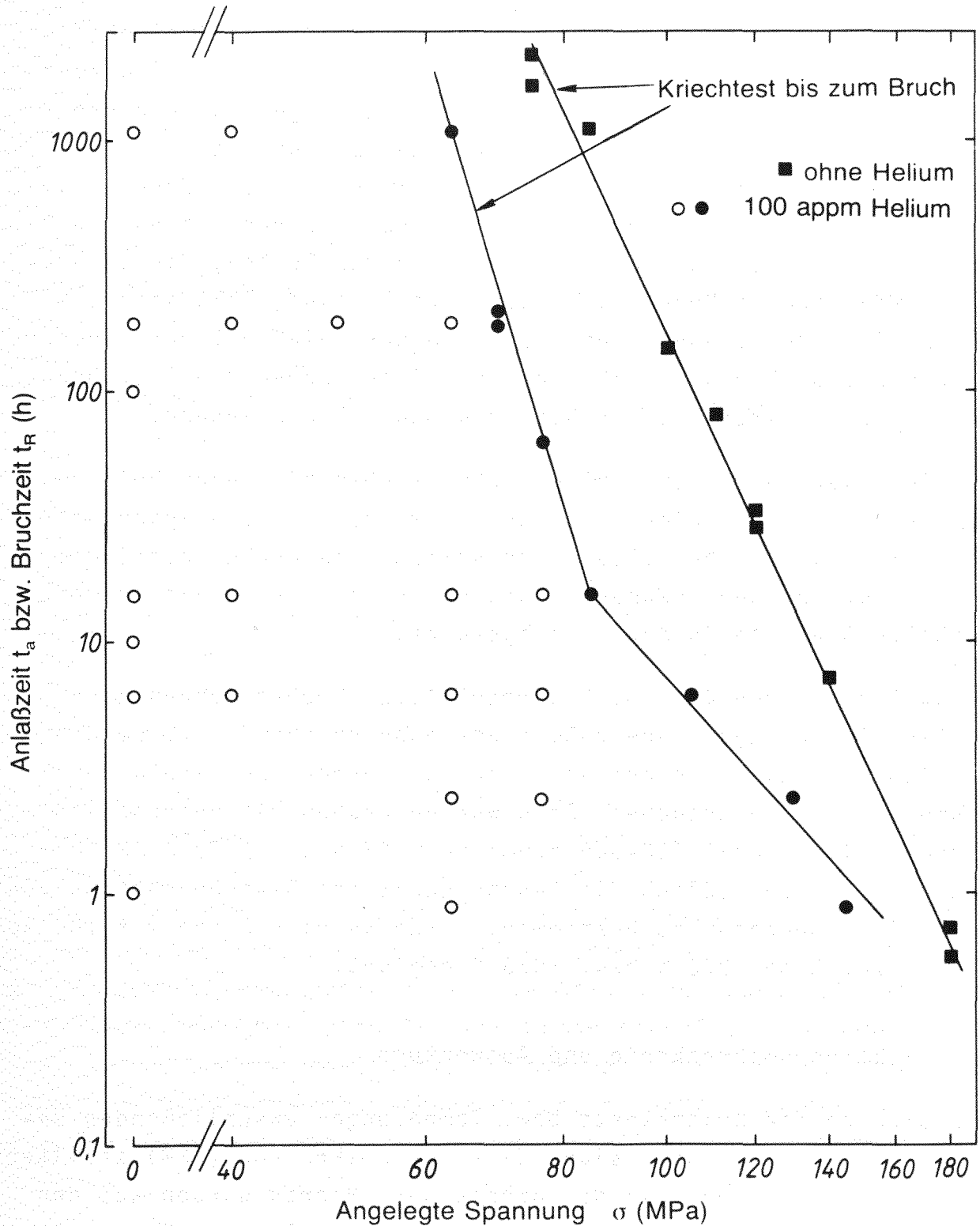


Abb. 2:  
Anlaßzeit  $t_a$  bzw. Bruchzeit  $t_R$  als Funktion der angelegten Spannung bei 1023 K. Die vollen Symbole stellen die Standzeiten  $t_R$  über der Spannung  $\sigma$  solcher Proben dar, die einem Kriechtest bis zum Bruch unterzogen wurden. Die offenen Symbole zeigen die Anlaßzeiten und Spannungen der übrigen mit 100 appm He implantierten Proben.



in Abb. 2), d.h. für feste Spannungen wurde die maximal mögliche Temperzeit ermittelt. Anschließend wurden weitere mit 100 appm He beladene Proben unter den gleichen Spannungen für kürzere Zeiten geglüht, wobei die Glühzeiten den Bruchzeiten bei höheren Spannungen entsprachen (offene Kreise in Abb. 2). Andere He-implantierte Proben wurden entsprechend den vorher gefundenen Bruchzeiten ohne Spannung getempert. An den Proben, die in Abb. 2 als waagerechte Punktreihen dargestellt sind, läßt sich somit der Einfluß der Spannung bei vorgegebener Anlaßzeit untersuchen, an den als senkrechte Reihe dargestellten Proben die Zeitabhängigkeit bei fester äußerer Spannung bzw. ohne Spannung.

Um die Kriechdaten der implantierten Proben mit denen heliumfreier Proben vergleichen zu können, wurde noch die Spannungsabhängigkeit von  $t_R$  bei 1023 K für heliumfreie Proben bestimmt; die entsprechenden Spannungen und Bruchzeiten sind als schwarze gefüllte Quadrate in Abb. 2 aufgeführt.

Zusätzlich zu den in Abb. 2 dargestellten Proben wurden noch weitere Temperungen ohne äußere Spannung durchgeführt, um den Einfluß der Heliumkonzentration auf die Größe und Dichte der Heliumblasen zu untersuchen. Dazu wurden Proben mit unterschiedlichem Heliumgehalt (10-300 appm) für 185 h bei 1023 K im UHV geglüht. Um schließlich die Abhängigkeit des Blasenwachstums von der Anlaßtemperatur zu bestimmen, wurde je eine Probe mit 100 appm He für 185 h bei 973 K bzw. 1073 K geglüht.

#### 4. Elektronenmikroskopie und Auswertung

Die sich an die Kriechtests bzw. Temperungen anschließenden Untersuchungen im Transmissions-Elektronenmikroskop (TEM) stellten den umfangreichsten Teil der Arbeit dar. Hierzu wurden aus den heliumimplantierten, ohne Spannung geglühten Folienstücken Scheiben von 3 mm  $\varnothing$  gestanzt bzw. der Meßbereich der Kriechproben in zwei Stücke von je 3 mm Länge zerschnitten und anschließend mit einem standardisierten elektrochemischen Verfahren abgedünnt  
/25/.

Die so präparierten Proben wurden in einem Philips-EM 400 Elektronenmikroskop bei einer Beschleunigungsspannung von 120 kV untersucht. Die in den implantierten Proben beobachteten Heliumblasen wurden leicht unterfokussiert abgebildet, wobei kinematische Vielstrahlbedingungen angewandt wurden /34/. Bei einer unterfokussierten Abbildungsweise erscheint das Bild einer Blase im Vergleich zum Hintergrund als hell und ist außen durch einen dunklen Ring begrenzt. Besonders im Fall sehr kleiner Blasen erwies es sich als günstig, jede Probenstelle zusätzlich unter überfokussierten Bedingungen zu fotografieren, wo Blasen als schwarze Punkte abgebildet werden. Solche zusätzlichen überfokussierten Aufnahmen erleichtern das Auffinden sehr kleiner Blasen, während sie für das Erstellen von Größenverteilungen weniger geeignet sind.

Alle Proben, die unter äußerer Spannung geglüht worden waren, wurden jeweils so im Probenhalter des TEM montiert, daß die Richtung der Spannung parallel zu einer bestimmten Translationsachse verlief. Somit konnte bei allen Aufnahmen die Orientierung der äußeren Spannung festgehalten werden.

Nach jeder für eine quantitative Auswertung bestimmten Aufnahme wurde die Probendicke an der betreffenden Stelle bestimmt. Hierzu wurden mit einem im TEM integrierten energiedispersiven Röntgenspektrometer (EDX) die durch den Elektronenstrahl erzeugten Röntgenquanten gezählt. Bei festem Elektronenstrahlstrom und konstanter Beschleunigungsspannung ist die Anzahl der rückgestreuten und im Detektor registrierten Quanten proportional zur Probendicke. Führt man mit einer geeigneten Korngrenze oder aufgedampften Kontaminationspunkten eine Eichung durch, so läßt sich das beschriebene Verfahren für eine genaue und schnelle Dickenbestimmung von beliebigen Probenstellen verwenden /35/.

Die Genauigkeit der Dickenmessung wurde zu etwa  $\pm 15\%$  ermittelt und ergibt sich aus dem Dickenfehler der zur Eichung verwendeten Korngrenze ( $< 10\%$ ) und der begrenzten Reproduzierbarkeit des Elektronenstrahlstromes ( $< 5\%$ ).

Aus der Anzahl der Heliumblasen einer TEM-Aufnahme und der jeweils gemessenen zugehörigen Probendicke wurde die Dichte der

Heliumblasen errechnet, wobei für jede Probe aus 10-20 TEM-Aufnahmen der Mittelwert gebildet wurde.

Die TEM-Aufnahmen wurden anschließend dazu verwendet, die Größenverteilung der Heliumblasen in den einzelnen Proben zu bestimmen. Dazu wurden zunächst Vergrößerungen im Format DIN A4 bzw. DIN A3 auf transparentem Folienpapier angefertigt und anschließend die Größen der einzelnen Blasen mit einem Teilchengrößen-Analysator bestimmt. Außer bei den Proben mit der geringeren Heliumkonzentration (10 und 30 appm) wurden jeweils etwa 800-1300 Blasen ausgemessen.

Im folgenden soll kurz auf mögliche Fehler hingewiesen werden, die bei der Bestimmung der Blasengröße und der zugehörigen Verteilung auftreten können. Zunächst sind einige Fehlerquellen zu nennen, die eine Verschiebung oder Verzerrung der Gesamtverteilung zur Folge haben. Hier sind z.B. die Ungenauigkeiten in der nominellen Vergrößerung des TEM und bei der Vergrößerung vom TEM-Negativ auf Abzüge anzuführen. Eine Verbreiterung der Größenverteilung erfolgt bei der Auswertung im Teilchengrößen-Analysator durch die Einteilung der einzelnen Blasen in Größenklassen und durch subjektive Fehler des Auswertenden. Die bisher angeführten Fehler führen zu einer allgemeinen Streuung der Meßwerte.

Eine weitere Fehlerquelle ist bedingt durch die Auflösungsgrenze für Heliumblasen im TEM, wodurch Blasen, deren Radius kleiner als etwa 0.7 bis 0.8 nm beträgt, nicht mehr nachgewiesen werden können. Des weiteren ist bei Blasen bis zu einem Radius von etwa 1 nm damit zu rechnen, daß einige bei der Auswertung übersehen werden. Diese Art von Fehlern verfälscht besonders die Verteilung sehr kleiner Blasen; es ergeben sich zu niedrige Blasendichten und die mittleren Blasenradien erscheinen zu groß.

Neben den bisher beschriebenen Untersuchungen im TEM wurden auch solche im Rasterelektronenmikroskop (SEM) durchgeführt. Hier wurde der Einfluß des implantierten Heliums auf den Bruchtyp und die Bruchfläche der Proben untersucht, die einem Kriechtest bis zum Bruch unterzogen worden waren.



### III. Ergebnisse

#### 1. Kriechtests

Zunächst sollen die mechanischen Daten der Proben dargestellt werden, die bei 1023 K einem Kriechtest bis zum Bruch unterzogen wurden. Die Bruchzeiten der heliumfreien Proben weisen eine für dieses Material typische starke Abhängigkeit von der angelegten äußeren Spannung  $\sigma$  auf (Abb. 2), wobei sich die beobachtete Spannungsabhängigkeit der Bruchzeit  $t_R$  durch ein Potenzgesetz der Form  $t_R \propto (\frac{1}{\sigma})^n$  beschreiben läßt mit einem Exponenten  $n = 9.6 \pm 0.2$ .

Proben, die mit 100 appm He implantiert waren, zeigen ein gegenüber heliumfreien Proben stark verändertes Verhalten. So wird nach He-Implantation eine drastische Reduktion der Bruchzeit beobachtet, die ihrerseits noch spannungsabhängig ist (Abb. 2). Der Effekt ist maximal bei einer Spannung  $\sigma = 85$  MPa und beträgt dort fast zwei Größenordnungen. Formal können die Meßergebnisse wie im heliumfreien Fall durch ein Potenzgesetz beschrieben werden, wobei der Spannungsexponent für  $\sigma \leq 85$  MPa  $n = 4.9 \pm 0.4$  und für  $\sigma \geq 85$  MPa  $n = 14.4 \pm 0.4$  beträgt.

Die bei den Kriechtests gefundenen Bruchdehnungen  $\epsilon_R$  sind in Abb. 3 dargestellt. Bei heliumfreien Proben nimmt diese etwa linear mit steigender Spannung ab. Die mit 100 appm He implantierten Proben weisen eine starke Versprödung auf, die sich in der um bis zu einer Größenordnung reduzierten Bruchdehnung zeigt. Die Spannungsabhängigkeit der Bruchdehnung weist ebenso wie die Standzeit bei einer Spannung  $\sigma = 85$  MPa eine starke Änderung in der Steigung auf.

Am Anschluß an die Kriechtests wurden die Bruchflächen von implantierten und heliumfreien Proben im SEM untersucht. Dabei wird ein eindeutiger Übergang von einem duktilen, transkristallinen Bruchtyp bei heliumfreien Proben zu einem interkristallinen Sprödbbruch bei heliumimplantierten Proben beobachtet (Abb. 4). Einige Korngrenzflächen von interkristallin gebrochenen Proben weisen kleine Grübchen auf, die als Reste von großen Heliumblasen an Korngrenzen interpretiert werden können. Ein Einfluß der

bei  $\sigma = 85$  MPa beobachteten Änderung der Spannungsabhängigkeit von Standzeit und Bruchdehnung auf den Bruchtyp wurde bei den SEM-Untersuchungen nicht festgestellt. Unabhängig von der Spannung betrug der interkristalline Anteil mehr als 90 % der Bruchfläche.

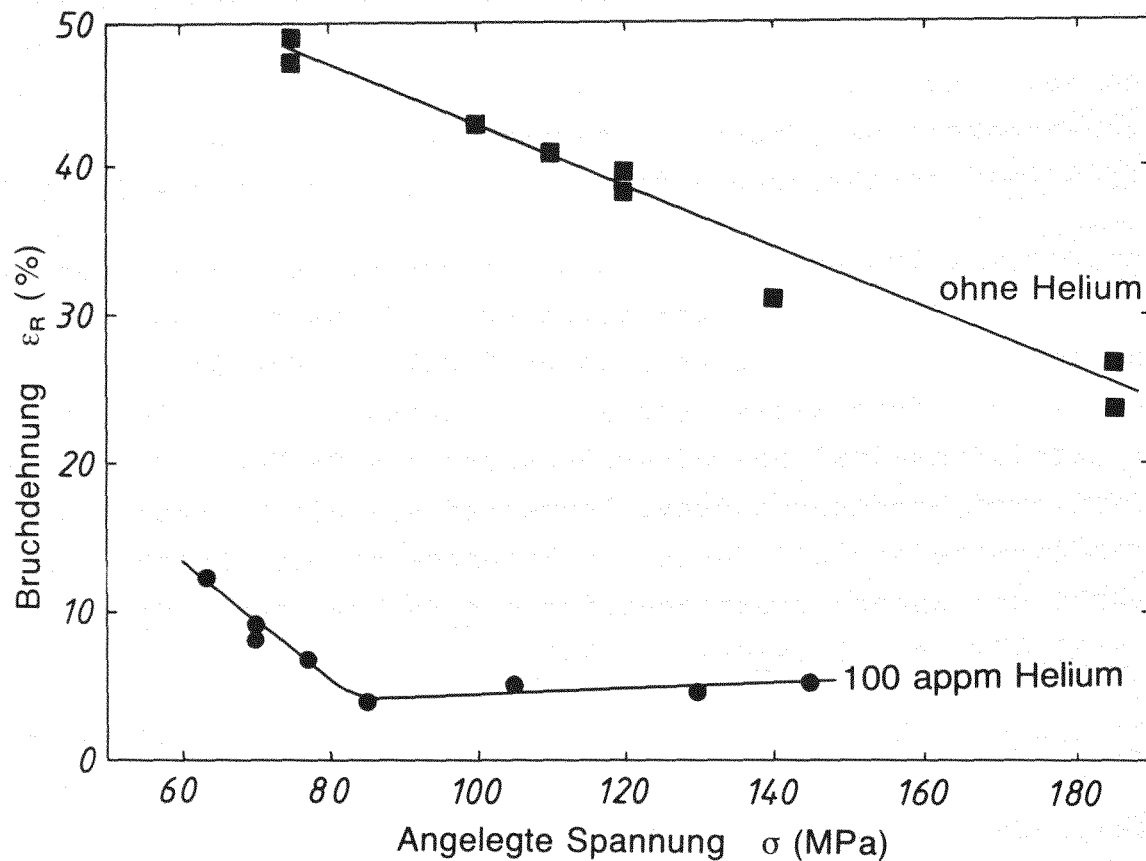


Abb. 3:

Bruchdehnung  $\epsilon_R$  als Funktion der angelegten Spannung  $\sigma$  im Vergleich zwischen Proben mit 100 appm Helium und heliumfreien Referenzproben. Die Temperatur der Kriechtests betrug 1023 K.

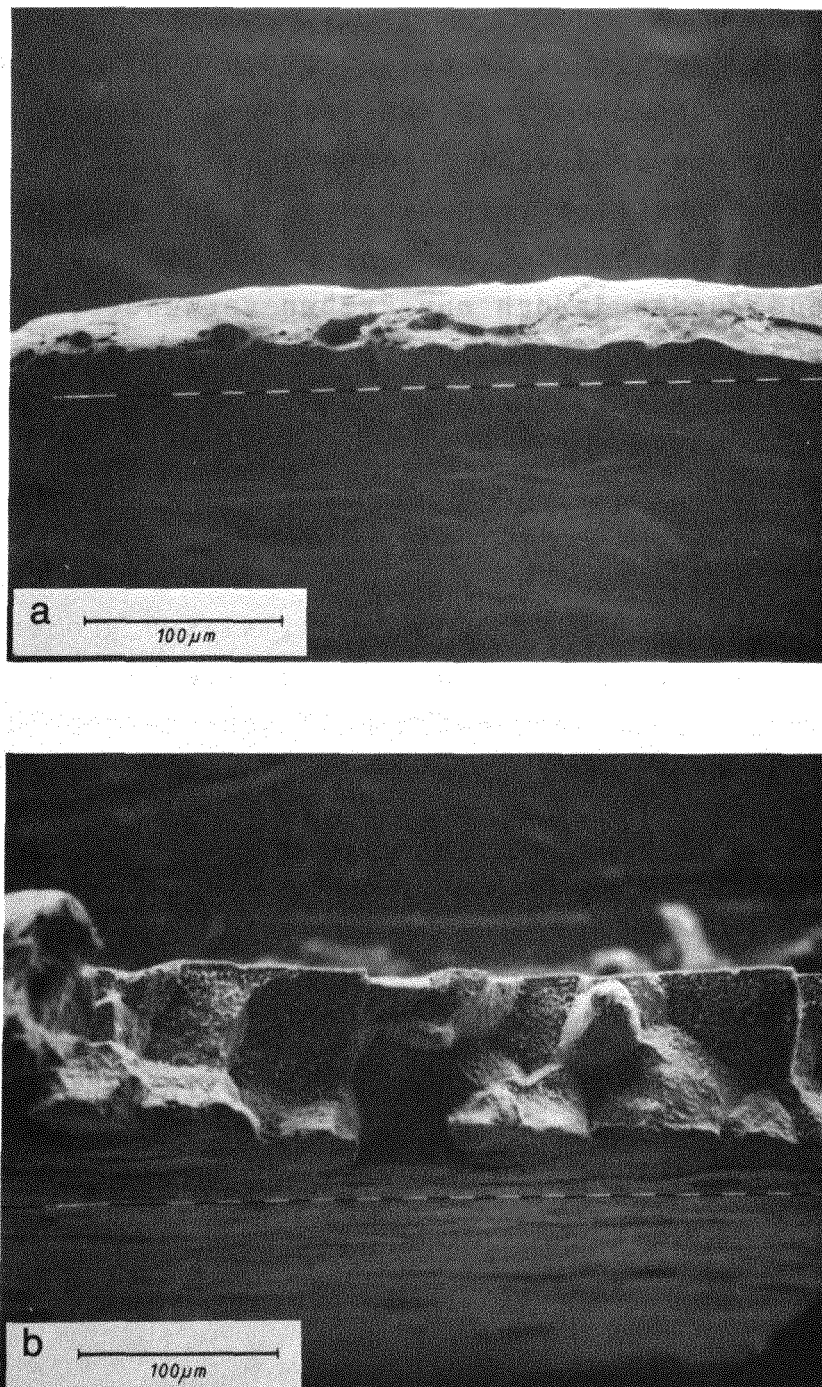


Abb. 4:  
SEM-Aufnahmen von Bruchflächen nach Kriechtests bei 1023 K; (a) heliumfreie Probe (duktiler Bruch) und (b) Probe mit 100 appm He (interkristalliner Bruch).



## 2. Untersuchung der Heliumblasen

Nach Implantation von 100 appm Helium und anschließender Glühung unter Spannung wurden die einzelnen Proben im TEM untersucht. In einer Probe, die nur 5 Minuten getempert worden war, konnten bereits eine Reihe sehr kleiner He-Blasen in der Matrix wie auch in den Korngrenzen beobachtet werden. Für die weitere quantitative Auswertung wurden jedoch nur Proben verwendet, die mindestens eine Stunde bei 1023 K geglüht worden waren. Typische elektronenmikroskopische Aufnahmen von Heliumblasen zeigen die Abbildungen 5 und 6.

Die äußere Form der im TEM beobachteten Heliumblasen ist abhängig von ihrer Größe. Während kleine Blasen (bis etwa 4 nm Radius) eine nahezu sphärische Oberfläche haben, wiesen größere Blasen eine leichte Facettierung auf. Da die Facettenbildung jedoch in keinem für diese Arbeit verwandten Fall sehr ausgeprägt war, können auch diese Blasen durch den Radius einer Kugel gleichen Volumens hinreichend gut beschrieben werden. Ähnlich ist dies bei Blasen an Korngrenzen, die mit wachsender Größe eine zunehmend ellipsoide Form aufweisen. Auch diese Blasen sollen im folgenden durch Kugeln mit gleichem Volumen beschrieben werden.

Um die in einer Probe gefundene Größenverteilung der Heliumblasen zu charakterisieren, soll, wie in der Literatur üblich, der mittlere Blasenradius  $r_m$  verwandt werden. Der mittlere Blasenradius berechnet sich aus  $r_m = \sum_i n_i r_i / N$ ; dabei ist  $n_i$  die Anzahl der Blasen in der  $i$ -ten Größenklasse,  $r_i$  der mittlere Radius der entsprechenden Klasse und  $N$  die Gesamtzahl der vermessenen Blasen ( $N = \sum_i n_i$ ).

## 2.1. Heliumblasen an Korngrenzen

Die Eigenschaften von Heliumblasen an Korngrenzen sind deshalb von besonderer Bedeutung, da sie als Ursache für das Spröbruchverhalten von heliumbeladenen Proben angesehen werden /36,37,38/. Obgleich das Hauptziel der vorgelegten Arbeit eine Aufklärung der Blasenbildung in der Matrix ist, sollen doch einige qualitative Ergebnisse elektronenmikroskopischer Untersuchungen von Heliumblasen an Korngrenzen beschrieben werden.

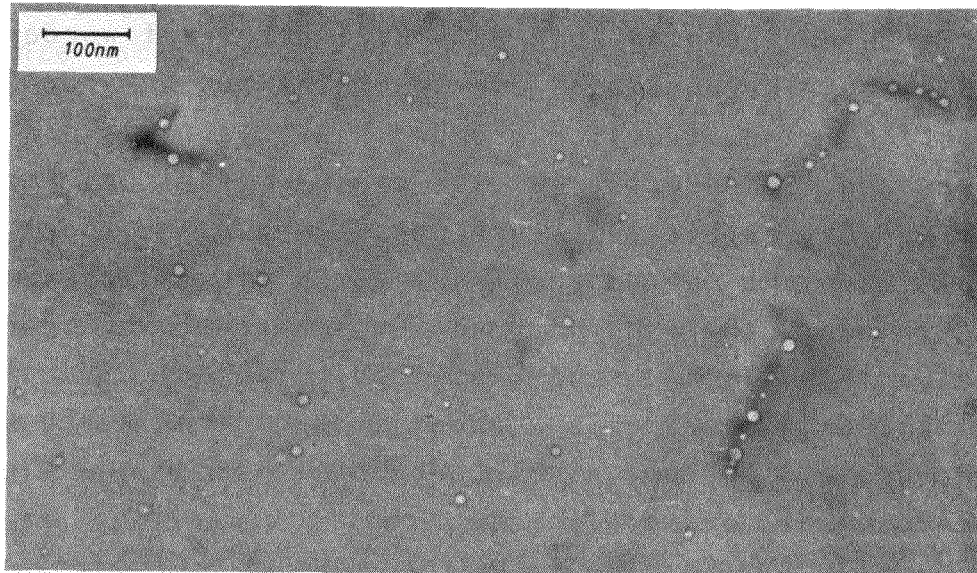


Abb. 5:  
TEM-Aufnahme von Heliumblasen in der Matrix und an einer Versetzung.

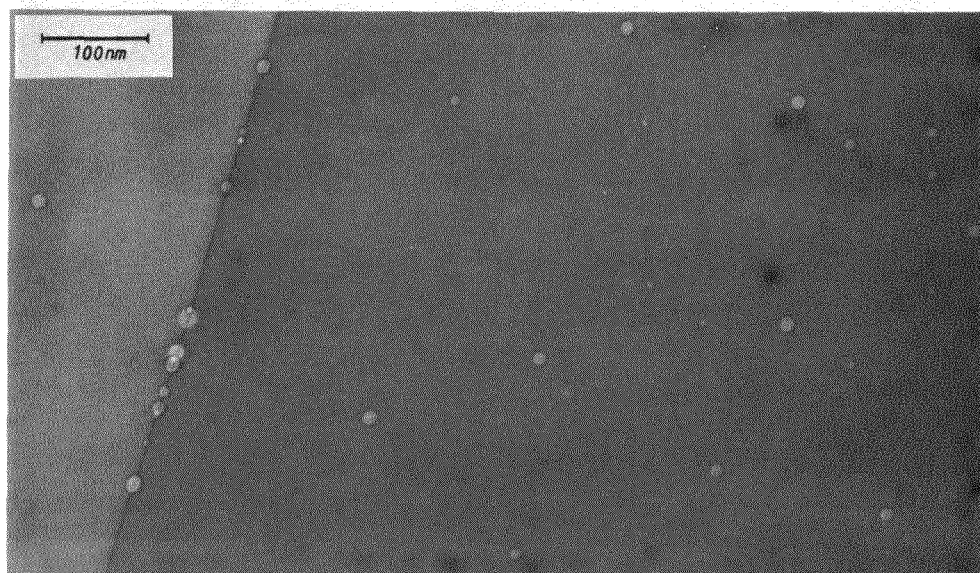


Abb. 6:  
Heliumblasen an einer Korngrenze.

### 2.1.1. TEM-Untersuchungen

TEM-Untersuchungen an Proben, die ohne äußere Spannung bei 750°C geglüht wurden, zeigen, daß der mittlere Radius  $r_m$  von Heliumblasen in der Korngrenze etwa 25 % größer ist als von benachbarten Blasen in der Matrix. Außerdem wurde festgestellt, daß Korngrenzen im Allgemeinen von einer Zone umgeben sind, in der fast keine Blasen zu beobachten sind und deren Breite etwa dem mittleren Blasenabstand in der Matrix entspricht (Abb. 6).

Proben, die unter Spannung ( $\sigma > 63.5$  MPa) getempert worden sind, weisen an einigen Korngrenzen, die senkrecht zur äußeren Spannung orientiert sind, deutlich größere Blasen auf als die übrigen Korngrenzen. Besonders groß ist dieser Effekt bei Proben, die einem Kriechtest bis zum Bruch unterzogen waren: hier werden in den vom TEM nicht mehr durchstrahlbaren dicken Bereichen der Probe Reihen von Löchern an Korngrenzen senkrecht zur Spannung beobachtet, die auf sehr große Blasen ( $r \geq 500$  nm) hindeuten (Abb. 7). Blasen dieser Größe können im durchstrahlbaren Bereich der TEM-Probe ( $d < 300$  nm) nicht beobachtet werden, da sie während des Abdünnens zerstört werden.

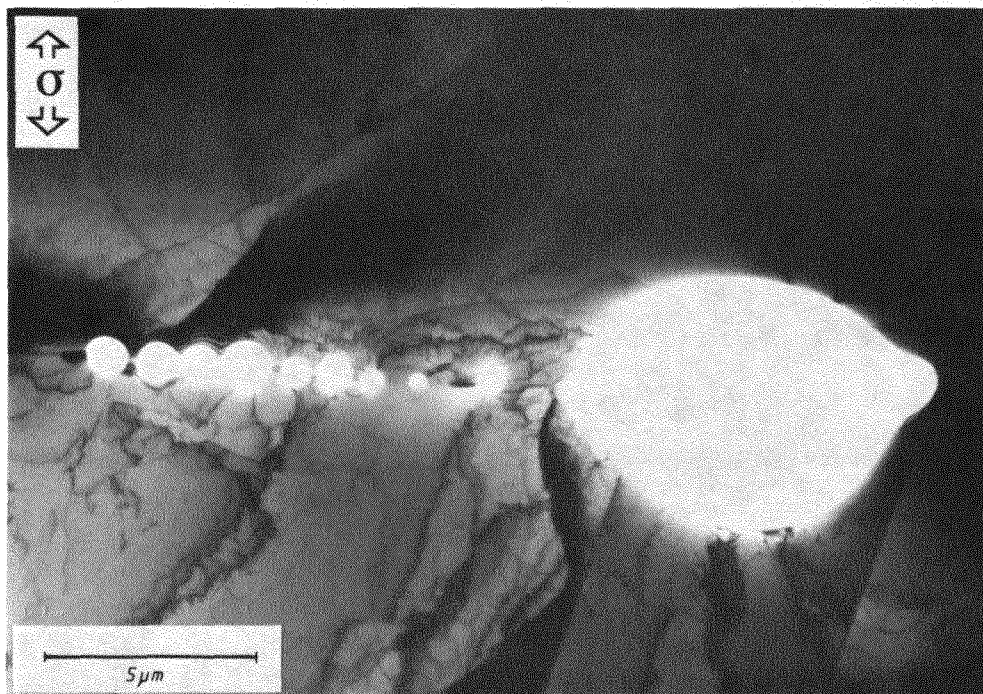


Abb. 7:

TEM-Aufnahme von großen Hohlräumen (Heliumblasen) entlang einer senkrecht zur angelegten Spannung  $\sigma$  orientierten Korngrenze.

### 2.1.2. SEM-Untersuchungen

Aufgrund der in nicht mehr durchstrahlbaren Bereichen von TEM-Proben gefundenen Hinweise auf sehr große Blasen an einigen Korngrenzen, wurde die Oberfläche solcher TEM-Proben zusätzlich im SEM untersucht. Dabei wurden in den bis zum Bruch getesteten Proben an vielen senkrecht zur Spannung orientierten Korngrenzen Reihen von Hohlräumen beobachtet, die als große Heliumblasen gedeutet werden können (Abb. 8a, b). Zum Teil sind diese Blasen schon untereinander verbunden, d.h. entlang einer solchen Korngrenze hat sich bereits ein kleiner Riß gebildet. Der Radius solcher Blasen, die an einigen senkrecht zur angelegten Spannung orientierten Korngrenzen zu finden sind, beträgt typischerweise 400-800 nm.

Die starke Abhängigkeit der an Korngrenzen beobachteten Blasengröße von der Orientierung der entsprechenden Korngrenze zur angelegten Spannung, wie dies besonders bei den bis zum Bruch getemperten Proben beobachtet wird, macht eine quantitative Auswertung solcher Blasen sehr aufwendig, da der Winkel zwischen Korngrenze und Spannung als zusätzlicher Parameter berücksichtigt werden muß. Da außerdem ein möglicher Einfluß des Korngrenzentyps, d.h. der relativen Orientierung der angrenzenden Körner wahrscheinlich ist /25/, wurde auf eine quantitative Auswertung der Korngrenzblasen verzichtet.



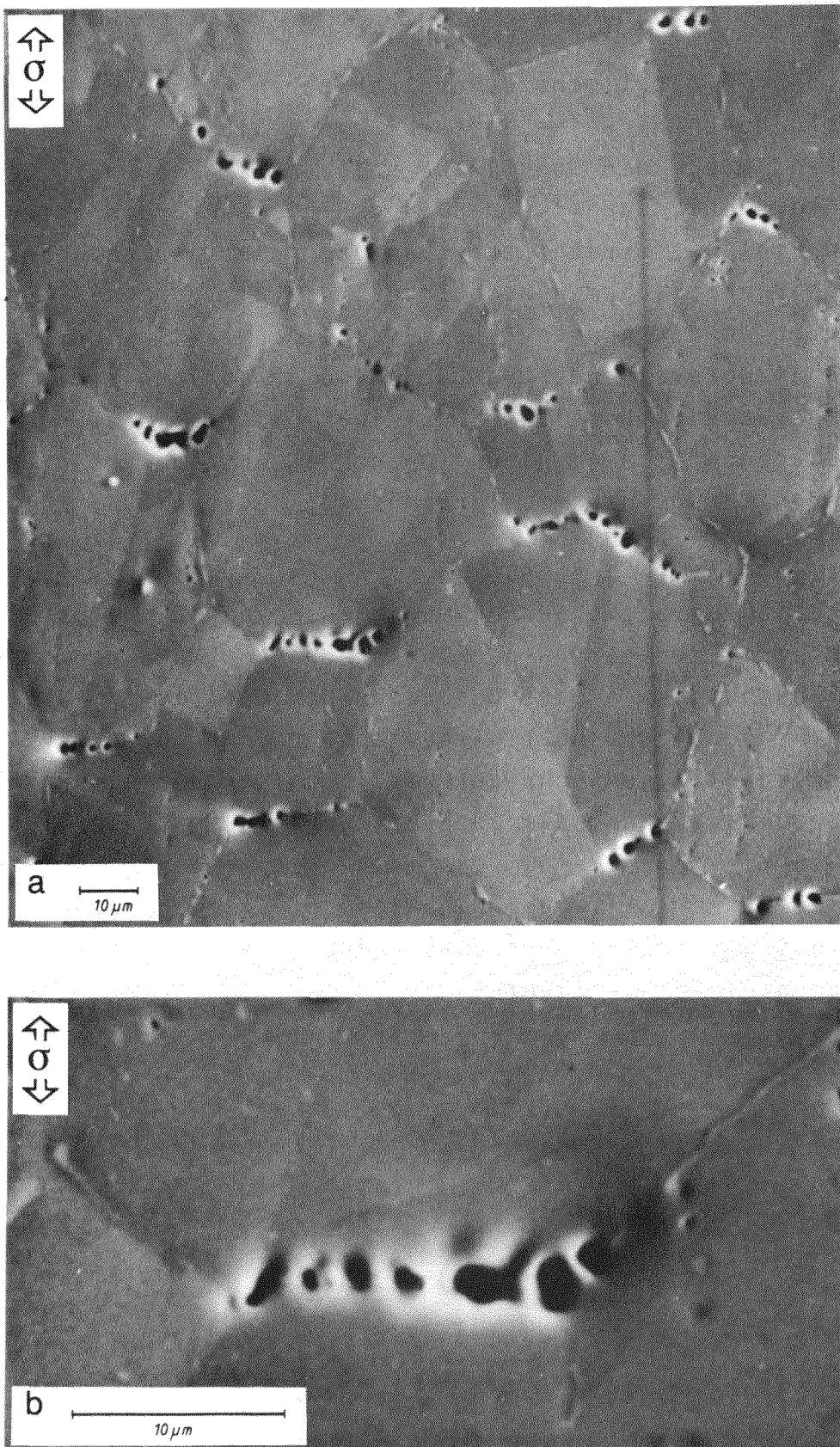


Abb. 8:  
SEM-Aufnahmen großer Heliumblasen an senkrecht zur Spannung orientierten Korngrenzen.



## 2.2. Einfluß von Spannung und Zeit auf Größe, Größenverteilung und Dichte von Heliumblasen in der Matrix

Wie schon mehrmals erwähnt, gilt das Hauptinteresse dieser Arbeit den Heliumblasen in der Matrix. Von den Matrixblasen nehmen diejenigen, die von einer Versetzung durchschnitten sind, eine Sonderstellung ein, da diese Verbindung zu einer Energieabsenkung der Blase führt /39,40,41/. Die bevorzugte Lage von Heliumblasen an Versetzungen wurde bei einigen Proben, die ohne äußere Spannung getempert worden waren, näher untersucht (siehe z.B. Abb. 5), wobei ein im Vergleich zur übrigen Matrix um etwa 15-20 % größerer mittlerer Blasenradius festgestellt wurde. Bei Proben, die unter äußerer Spannung gegläht worden waren, konnte keine eindeutige Differenz des mittleren Blasenradius zwischen Blasen an Versetzungen und den übrigen Matrixblasen festgestellt werden. Aufgrund der durch die äußere Spannung hervorgerufenen Versetzungsbewegung wird möglicherweise eine während der gesamten Versuchsdauer stationäre Verbindung zwischen Blasen und Versetzungen verhindert, so daß bei den im TEM an Versetzungen beobachteten Blasen die betreffenden Versetzungen keinen Einfluß auf die Keimbildung und einen erheblichen Zeitraum des Wachstums der Blasen hatten.

Da die verwendete Untersuchungsmethode (probenzerstörende TEM-Untersuchung am Ende des Tests) keine Auskunft darüber geben kann, welche Zeitanteile eine Blase an einer Versetzung bzw. in den versetzungsfreien Matrix verweilt, wird im folgenden nicht mehr zwischen Blasen an Versetzungen und anderen unterschieden.

### 2.2.1. Blasenwachstum ohne Spannung

Abb. 9 zeigt die zeitliche Entwicklung der Größenverteilung von Heliumblasen anhand von drei Proben mit einer implantierten Heliumkonzentration von 100 appm, die ohne äußere Spannung bei 1023 K für drei verschiedene Zeiten  $t_a$  getempert worden sind. Das Maximum der Blasenverteilung und deren Halbwertsbreite  $\Delta r$  nehmen mit wachsender Anlaßzeit zu, wobei die relative Halbwertsbreite  $\frac{\Delta r}{r}$  konstant bleibt. Eine TEM-Aufnahme der mittleren Grö-

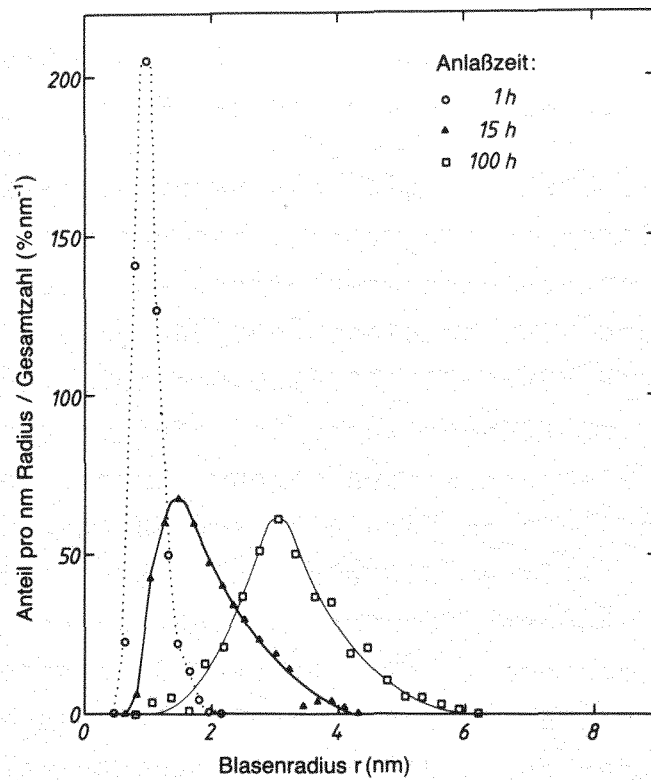


Abb. 9:

Einfluß der Anlaßzeit  $t_a$  auf die Größenverteilung von Blasen in der Matrix. Die Proben enthielten je 100 appm He und wurden ohne Spannung bei 1023 K geglüht.

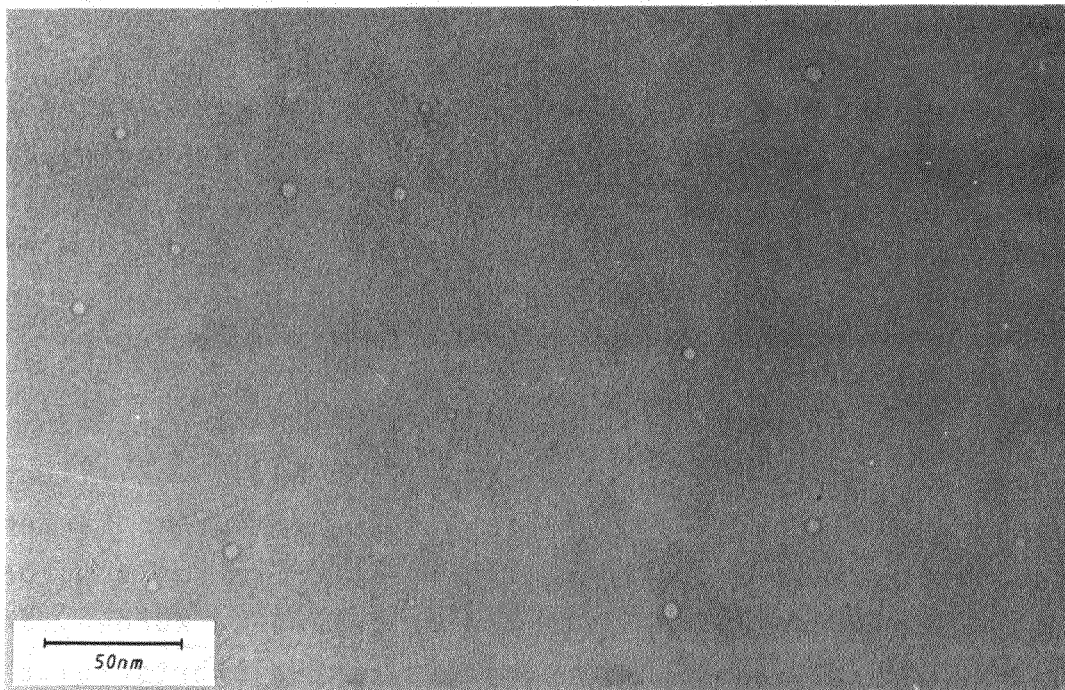


Abb. 10:

TEM-Aufnahmen von He-Blasen einer Probe mit 100 appm He, die ohne Spannung für 15 h bei 1023 K geglüht wurde. (mittlere Größenverteilung in Abb. 9)

Benverteilung ( $t_a = 15$  h) zeigt Abb. 10. Die zeitliche Entwicklung des mittleren Blasenradius  $r_m$  ist in Abb. 11 dargestellt. Das Wachstum der Blasen folgt einem Potenzgesetz der Form  $r_m \propto t_a^{1/n}$ , wobei die Meßwerte im spannungsfreien Fall für  $6 \text{ h} \leq t_a \leq 185 \text{ h}$  sehr gut durch  $n = 3.3 \pm 0.1$  beschrieben werden. Die gemessene mittlere Blasengröße nach einer Stunde bei 1023 K muß aufgrund von prinzipiellen Meßfehlern im Bereich sehr kleiner mittlerer Blasenradien (s.S. 9) und auch aufgrund von Untersuchungen der Blasendichte, die unter 2.2.3 behandelt werden, als zu groß angesehen werden. Eine Extrapolation der für  $t_a > 6$  h gemessenen Blasenradien würde nach einer Stunde einen mittleren Blasenradius von etwa 0.85 nm ergeben, ein Wert, der nur wenig über der Auflösungsgrenze für Blasen im TEM liegt. Somit wäre also etwa die Hälfte bis ein Drittel der tatsächlich in der Probe vorhandenen He-Blasen im TEM nicht auflösbar, so daß die gemessene Verteilung für diese Probe (s. Abb. 9) nur noch das obere Ende der tatsächlichen Blasenverteilung wiedergibt. Die Abweichung der mittleren Blasengröße für  $t_a = 1098$  h von der gefundenen Zeitabhängigkeit  $r_m \propto t_a^{1/3.3}$  ist entweder durch Streuung des Meßpunktes zu erklären oder sie ist auf eine Änderung des Exponenten  $n$  für lange Anlaßzeiten zurückzuführen.

#### 2.2.2. Der Einfluß der Spannung

Wird eine mit He beladene Probe unter angelegter Zugspannung getempert, so beobachtet man abhängig von der Größe der Spannung und der Dauer der Temperung eine Veränderung der Blasenverteilung und des mittleren Blasenradius. Während nach einer Temperung ohne äußere Spannung eine monomodale Blasenverteilung gefunden wird, beobachtet man bei einer Reihe von unter Spannung angelassenen Proben zwei Maxima, also eine bimodale Größenverteilung (Abb. 12). Eine TEM-Aufnahme einer Probe mit bimodaler Blasenverteilung zeigt Abb. 13 (mittlere Größenverteilung in Abb. 12). Der Einfluß der Spannung wird deutlich, wenn man die Aufnahme mit Abb. 10 vergleicht.

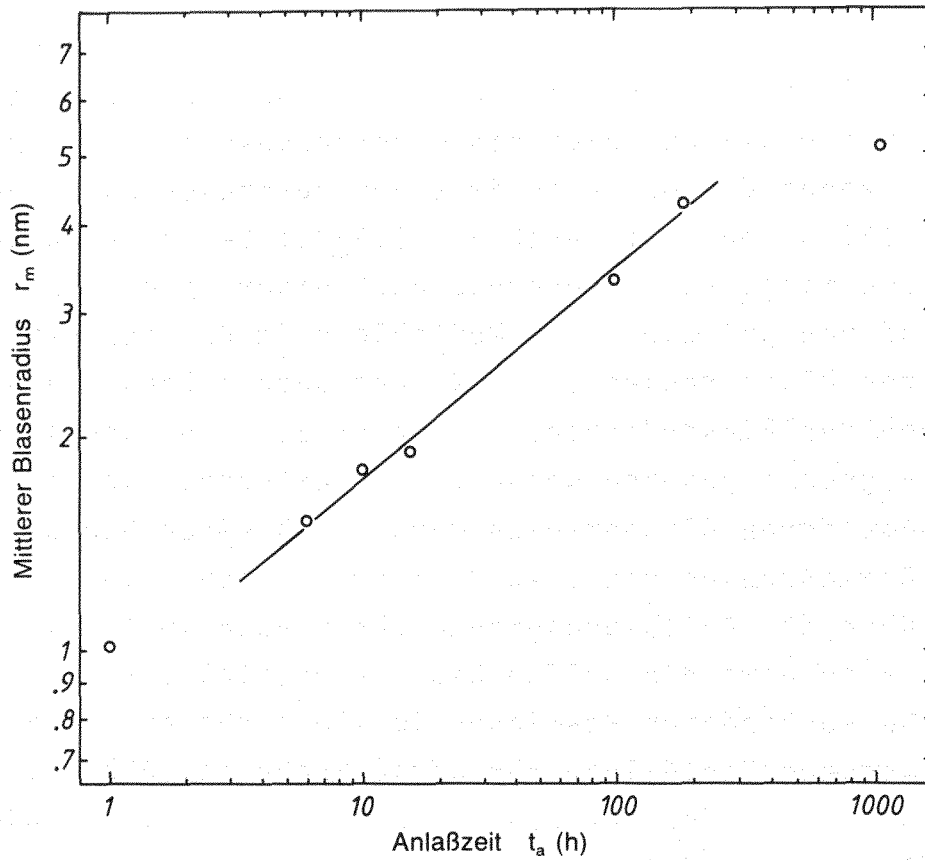


Abb. 11:  
Mittlerer Blasenradius  $r_m$  in Abhängigkeit von der Anlaßzeit  $t_a$  (Anlaßtemperatur  $T_a = 1023\text{K}$ , Heliumkonzentration  $C_{\text{He}} = 100$  appm, ohne Spannung).

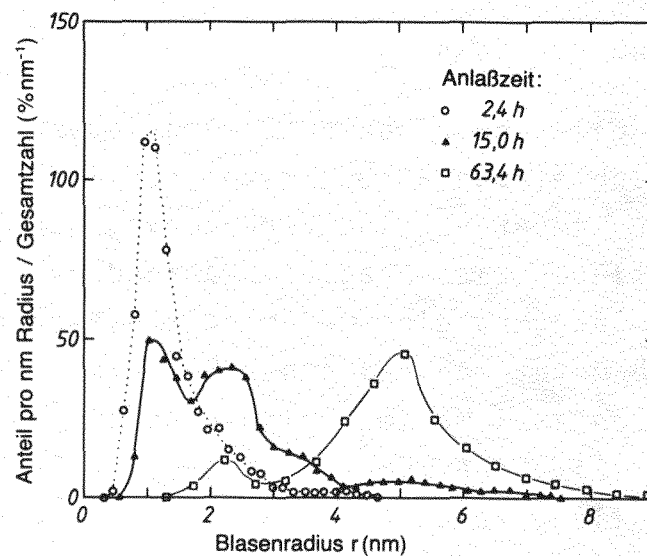


Abb. 12:  
Einfluß der Anlaßzeit  $t_a$  auf die Größenverteilung von Heliumblasen in der Matrix von Proben, die unter einer äußeren Spannung von 77 MPa gegläut wurden. Die Heliumkonzentration der Proben betrug 100 appm, die Anlaßtemperatur 1023 K.

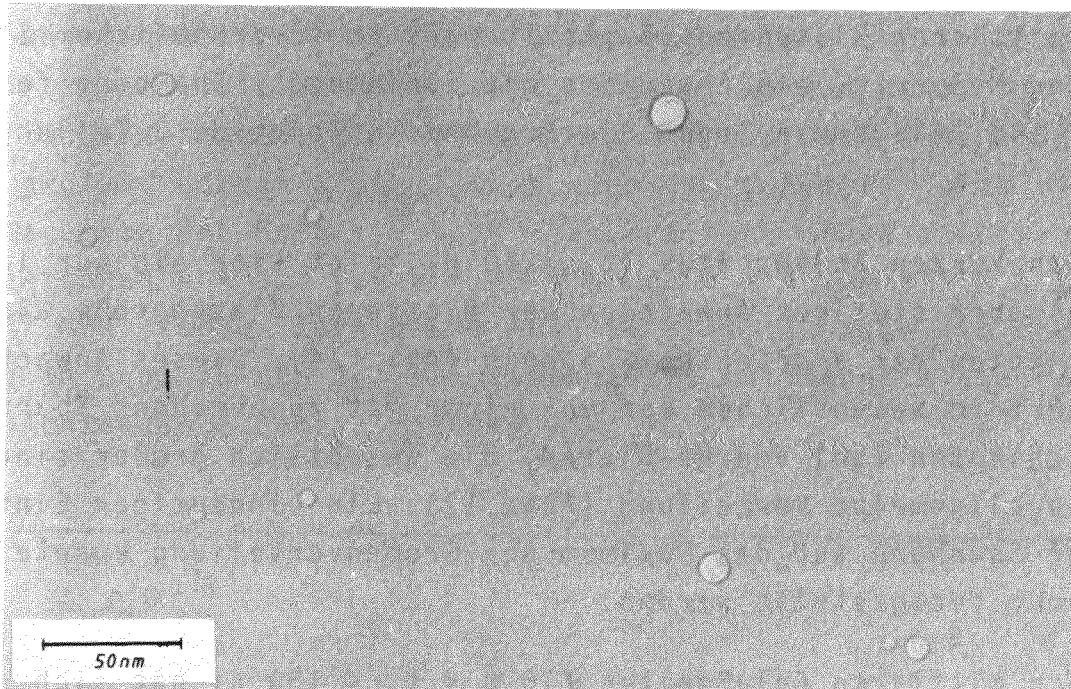


Abb. 13:

TEM-Aufnahme einer Probe mit 100 appm He, die unter 77 MPa 15 h bei 1023 K geglüht wurde.

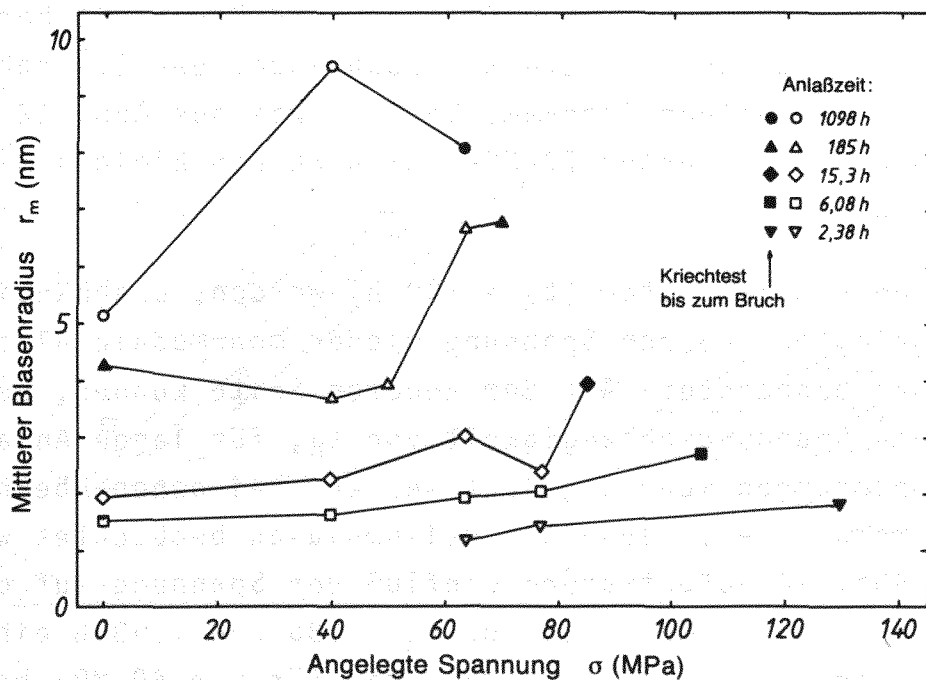


Abb. 14:

Abhängigkeit des mittleren Blasenradius  $r_m$  von der angelegten Spannung für Anlaßzeiten zwischen 2,38 und 1098 Stunden. Die implantierte Heliumkonzentration betrug 100 appm, die Anlaßtemperatur 1023 K.



Beim mittleren Blasenradius stellt man, trotz erheblicher Streuung der Meßwerte, ein Anwachsen mit zunehmender Spannung fest (Abb. 14). Allgemein legen die Ergebnisse folgende 3-Teilung nahe:

- 1) Nach kurzen Anlaßzeiten ( $t_a < 10$  h) zeigt sich ein nur leichtes aber stetiges Anwachsen der mittleren Blasengröße als Funktion der angelegten Spannung (Abb. 14). Dieses Anwachsen rührt im wesentlichen her von einer mit zunehmender Spannung wachsenden Zahl von He-Blasen, die wesentlich größer sind als die allgemeine Verteilung (Abb. 12). Ein eindeutiger Einfluß der Spannung auf das Maximum der Größenverteilung konnte nicht festgestellt werden.
- 2) Nach mittleren Anlaßzeiten ( $10 \text{ h} < t_a < 100 \text{ h}$ ) hat sich der schon nach kurzer Zeit zu beobachtende "Schwanz" von größeren Blasen zu einem 2. Maximum ausgebildet. Der Spannungsbereich, in dem sich eine bimodale Blasenverteilung ausbildet, liegt zwischen 60 und 90 MPa, wobei die für eine bestimmte Anlaßzeit möglichen Spannungen durch die in Abb. 2 aufgetragene Beziehung zwischen Spannung und Bruchzeit begrenzt ist. Mit steigender Anlaßzeit verschwindet der 1. Peak der bimodalen Verteilung langsam. So ist, wie aus Abb. 12 ersichtlich, nach 63.5 h unter 77 MPa nur noch ein kleines Maximum vorhanden.
- 3) Nach langen Anlaßzeiten ( $t_a > 100 \text{ h}$ ) werden, unabhängig von der angelegten äußeren Spannung wieder monomodale Blasenverteilungen beobachtet. Auf der anderen Seite können, bedingt durch die Spannungsabhängigkeit von  $t_R$ , für lange Anlaßzeiten keine Spannungen mehr angelegt werden, bei denen überhaupt eine bimodale Verteilung der Heliumblasen beobachtet wurde. Der in Abb. 14 aufgetragene Einfluß der Spannung auf die mittlere Blasengröße weist für  $t_a = 185$  und  $1098 \text{ h}$  eine starke Streuung auf, wobei besonders die für  $r = 40 \text{ MPa}$  beobachtete starke Differenz zwischen  $t_a = 185 \text{ h}$  und  $t_a = 1098 \text{ h}$  nicht erklärt werden kann.

Die Abhängigkeit des mittleren Blasenradius von der Anlaßzeit  $t_a$  für Proben, die unter Spannung geglüht worden sind, ist in Abb. 15 aufgetragen. Wie bei den Proben, die ohne äußere Spannung geglüht worden sind, lassen sich die Meßwerte durch ein Potenzgesetz der Form  $r \propto t_a^{1/n}$  beschreiben, wobei die Exponenten zwischen  $n = 3.3$  für  $\sigma = 40$  MPa und  $\sigma = 0$  und  $n = 2.6$  für  $\sigma = 77$  MPa liegen. Ebenso wie Abb. 14 spiegeln auch die Ergebnisse in Abb. 15 die leichte Zunahme des mittleren Blasenradius mit wachsender äußerer Spannung wieder.

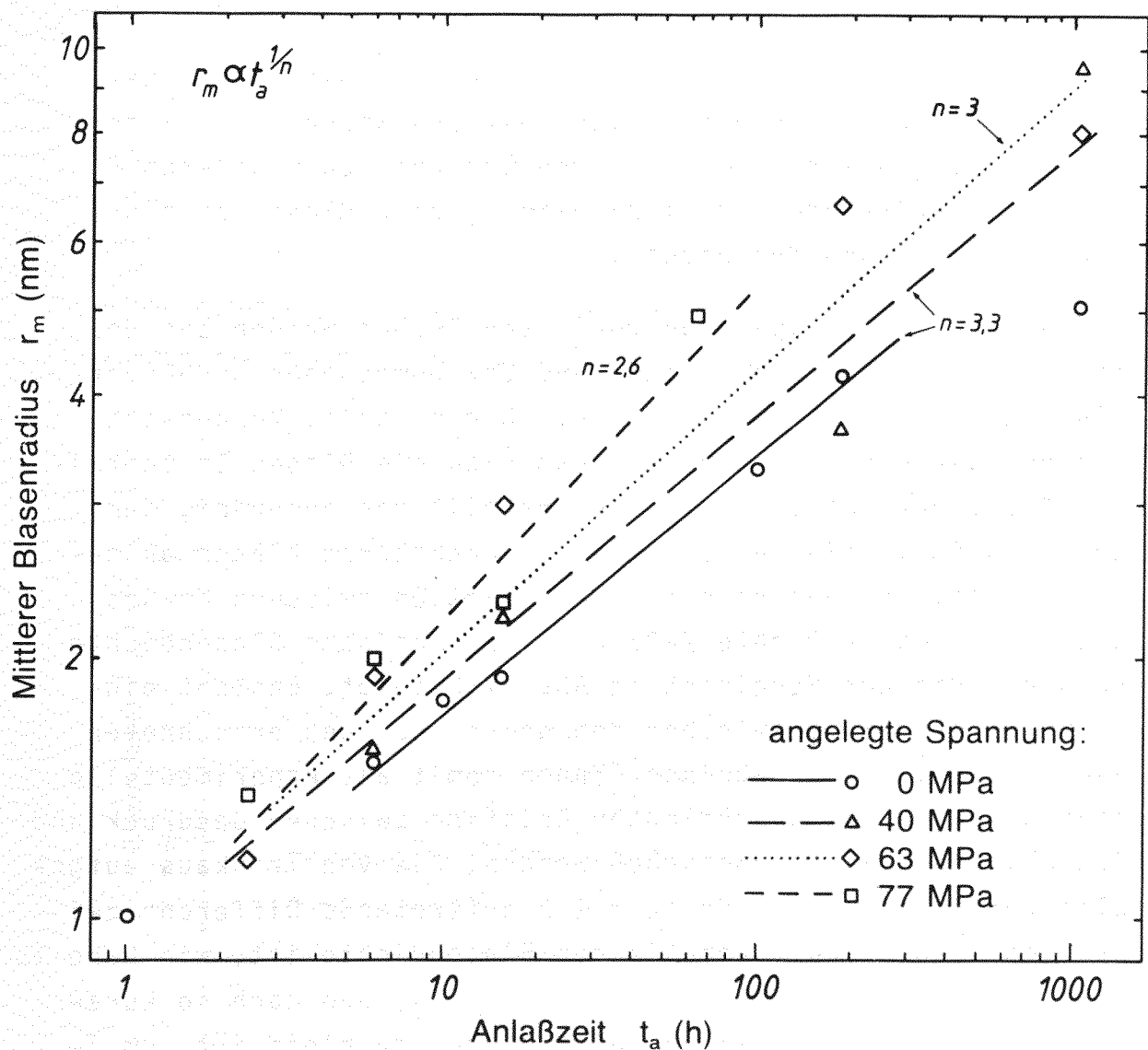


Abb. 15:  
Einfluß der Anlaßzeit auf den mittleren Blasenradius von Proben, die bei unterschiedlichen Spannungen geglüht werden. Die Anlaßtemperatur betrug 1023 K, die implantierte Heliumkonzentration 100 appm.

### 2.2.3. Die Dichte der Heliumblasen

Mit der bei allen TEM-Aufnahmen gemessenen Probendicke und der Gesamtzahl der in einer Probe beobachteten und vermessenen Heliumblasen wurde neben der Größenverteilung und dem Mittelwert des Blasenradius auch die mittlere Dichte der Blasen in der Matrix bestimmt. Die so ermittelten Blasendichten sind in Abb. 16a für eine Reihe von Spannungen als Funktion der Anlaßzeit aufgetragen. Man sieht, daß in allen Fällen die Blasendichte mit zunehmender Anlaßzeit deutlich abnimmt. Ebenso beobachtet man trotz der vorhandenen Streuung der Meßwerte eine deutliche Verringerung der Dichte mit zunehmender äußerer Spannung. Beide Abhängigkeiten stehen in direktem Zusammenhang mit dem Wachstum der Heliumblasen als Funktion von Zeit und Spannung. Bei sehr hohen Spannungen führt der sich weniger auf den mittleren Blasenradius auswirkende Anteil ziemlich großer Blasen zu einer starken Reduzierung der Dichte.

Für die ohne äußere Spannung geglühten Proben wurden aus der Menge des implantierten Heliums und der gemessenen Größenverteilung eine Blasendichte rechnerisch ermittelt. Voraussetzung für eine solche Berechnung ist, daß sich die Blasen im thermischen Gleichgewicht befinden. Unterstellt man außerdem, daß sich alles implantierte Helium in beobachtbaren Blasen ausgeschieden hat, so läßt sich mit der Relation zwischen He-Gasdruck und atomarer Dichte /42/ eine theoretische Blasendichte errechnen. Wie der Vergleich in Abb. 16b zeigt, besteht eine gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen und errechneten Blasendichten. Die Ergebnisse können somit als experimentelle Bestätigung der zugrundegelegten Relation zwischen Gasdruck und -dichte in den Blasen angesehen werden, die von Trinkaus aufgestellt wurde /42/. Die für  $t_a = 1$  h auftretende Differenz zwischen gemessener und theoretischer Blasendichte ist, wie bereits in 2.2.1 angedeutet, darauf zurückzuführen, daß nach so kurzer Anlaßzeit ein großer Teil der Blasen noch zu klein ist, um im TEM beobachtet werden zu können.

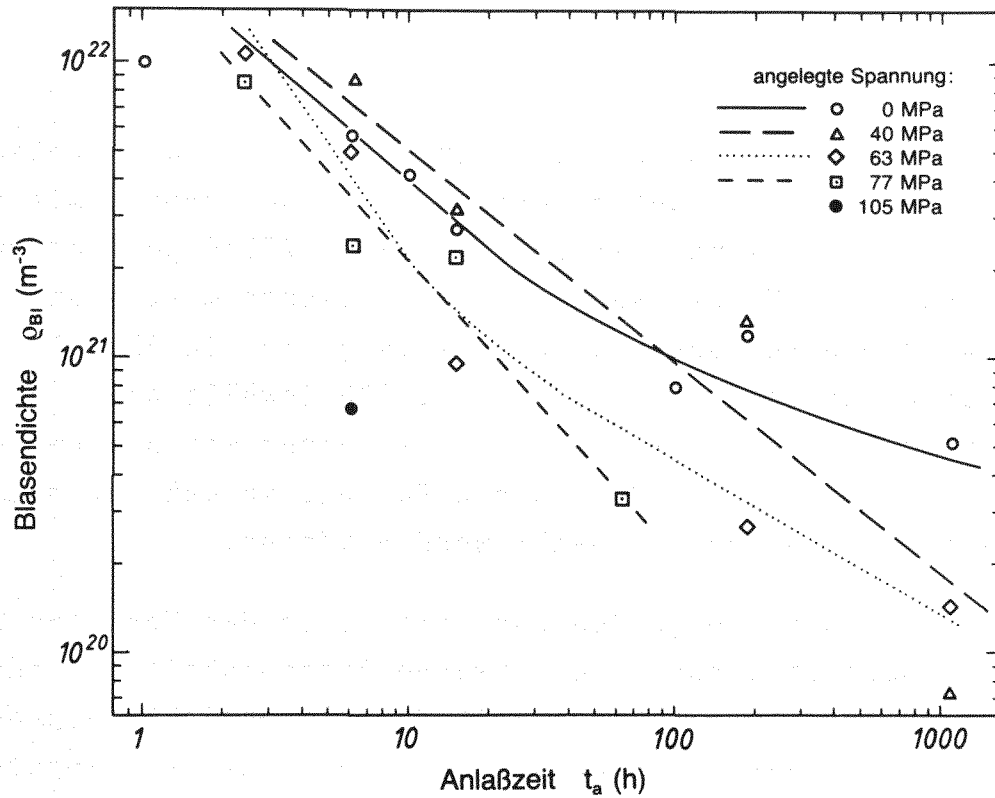


Abb. 16a:  
Einfluß der Anlaßzeit auf die Dichte von Heliumblasen in der Matrix. Die Heliumkonzentration betrug 100 appm, die Anlaßtemperatur 1023 K.

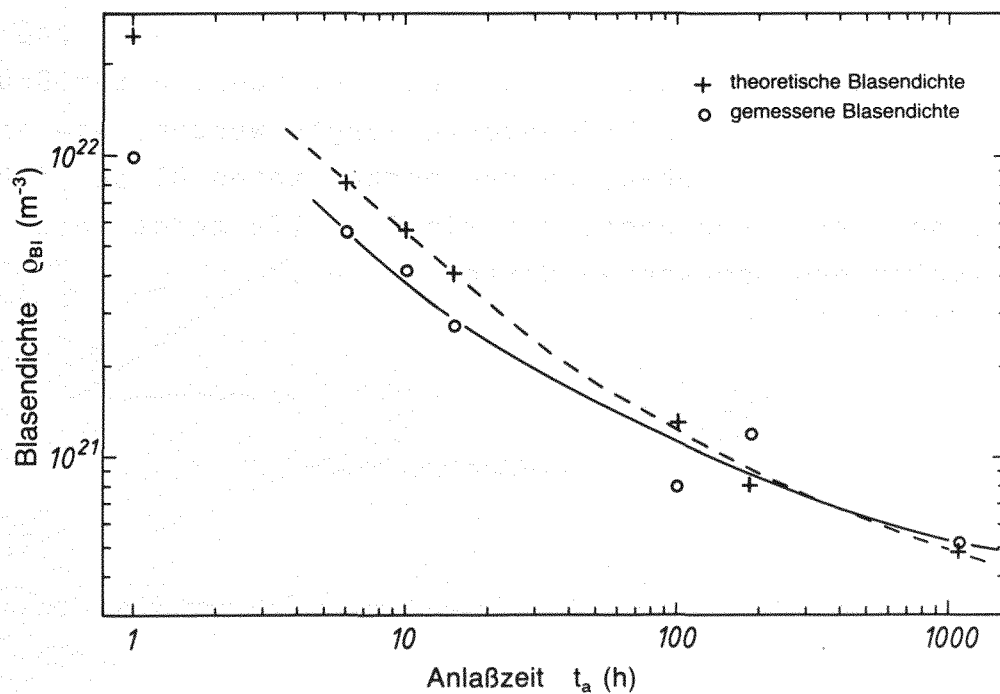


Abb. 16b:  
Vergleich der aus der implantierten He-Konzentration und der Größenverteilung der Heliumblasen errechneten theoretischen Blasendichte mit den experimentell gefundenen Werten. ( $C_{He} = 100$  appm,  $t_a = 1023$  K,  $\sigma = 0$  MPa)

### 2.3. Einfluß der Heliumkonzentration

Als weiterer Punkt wurde der Einfluß der Heliumkonzentration auf das Blasenwachstum untersucht. Dazu wurden Proben mit unterschiedlichem Heliumgehalt für 185 h bei 750°C geglüht und anschließend im TEM untersucht. Die gemessenen mittleren Radien und Halbwertsbreiten der Blasenverteilung sind in Abb. 17a, die gemessenen Blasendichten sind in Abb. 17b jeweils als Funktion der Heliumkonzentration aufgetragen. In einer mit 3 appm He beladenen Probe wurden nur 2 Blasen gefunden, so daß für die Konzentration keine Angaben gemacht werden können.

Die beobachteten Blasengrößen und somit auch das Wachstum zeigen, wenn überhaupt, nur eine schwache Abhängigkeit von der Heliumkonzentration. Die Abhängigkeit der Blasendichte von der He-Konzentration ist aufgrund der leichten Konzentrationsabhängigkeit der Blasengröße etwas stärker als die implantierte He-Konzentration selbst (gestrichelte Linie in Abb. 17b). Aufgrund der geringen Blasendichte in der mit 10 appm He implantierten Probe ist dieser Meßwert relativ unsicher (etwa  $\pm 25\%$ ).

Nach einer Anlaßzeit von 185 h kann angenommen werden, daß sich die Blasen im thermischen Gleichgewicht befinden. Unter Berücksichtigung der gemessenen Größenverteilungen wurden, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, zu den beobachteten Blasendichten theoretische Werte errechnet, die wie Abb. 17b zeigt, etwa 15 bis 30 % unter den gemessenen Werten liegen.



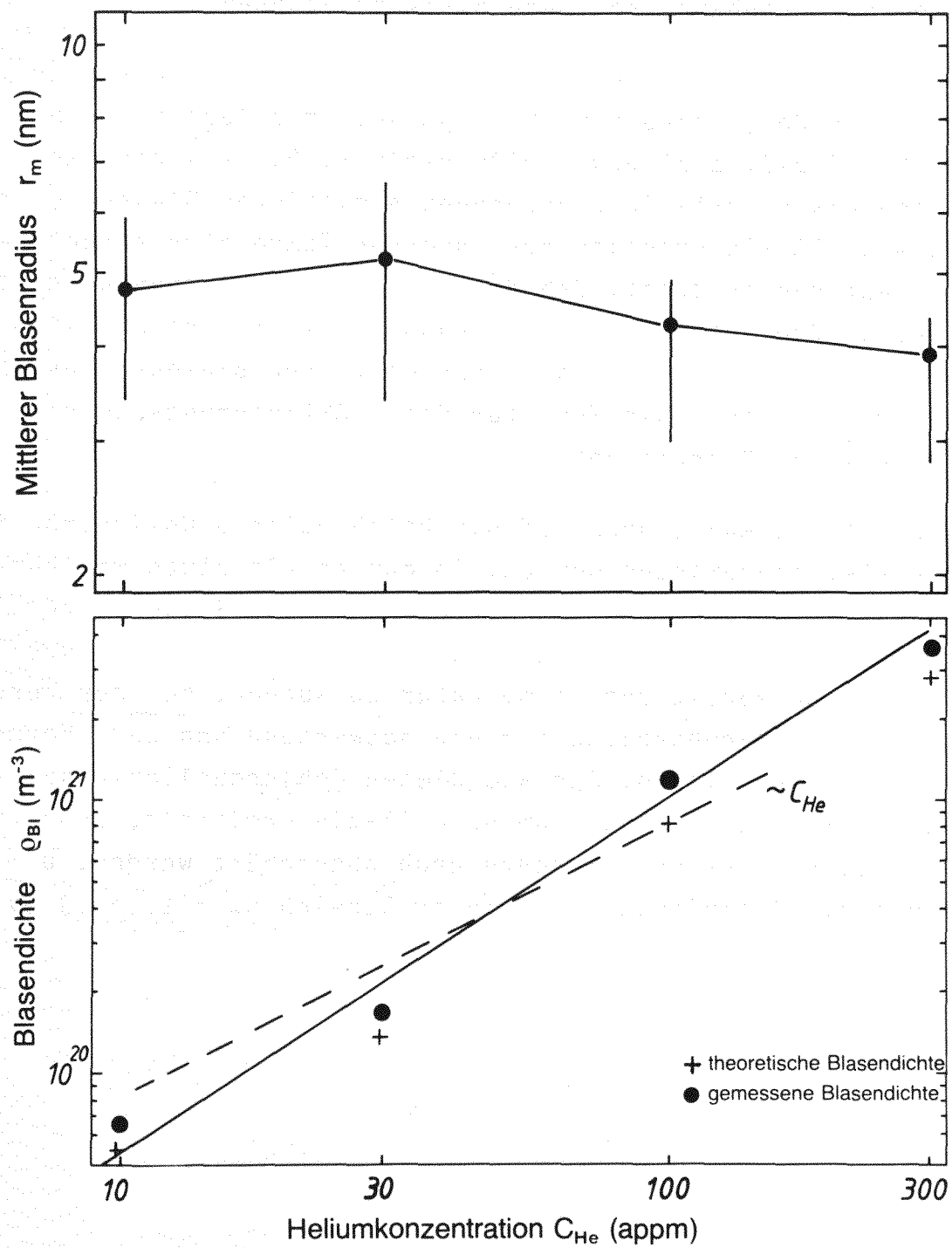


Abb. 17:

- Abhängigkeit des mittleren Blasenradius und der Halbwertsbreite (Balken) von der Heliumkonzentration nach 185 h Glühung bei 1023 K.
- Blasendichte als Funktion der Heliumkonzentration.

#### 2.4. Temperaturabhängigkeit und Aktivierungsenergie

Um den Einfluß der Anlaßtemperatur auf das Blasenwachstum zu bestimmen, wurde je eine mit 100 appm Helium beladenen Probe für 185 h bei 973, 1023 bzw. 1073K geglüht. Die aus der dann gemessenen Blasenverteilung errechneten mittleren Blasenradien sind in Abb. 18 als Funktion der inversen Temperatur aufgetragen. Die Auftragung zeigt, daß die Meßwerte ein Arrheniusgesetz erfüllen, so daß aus der Temperaturabhängigkeit eine Aktivierungsenergie  $Q_g$  für das Wachstum des mittleren Blasenradius abgeleitet werden kann. Als Wert für diese Aktivierungsenergie wurde  $Q_g = 1.83$  eV errechnet.

An dieser Stelle muß jedoch auf die beträchtliche Unsicherheit dieses Wertes hingewiesen werden. So muß es als etwas willkürlich angesehen werden, aus den Mittelwerten von Blasenverteilungen eine Aktivierungsenergie zu bestimmen. Weitere Fehlerquellen sind bei der Anlaßzeit und -temperatur zu suchen, bei der Vergrößerung der Transparentabzüge für die Auswertung und beim Vermessen der einzelnen Blasen. Der aus diesen Fehlerquellen resultierende Gesamtfehler kann kaum quantitativ ermittelt, sondern lediglich eine obere Fehlergrenze grob abgeschätzt werden. Demnach liegt die Aktivierungsenergie im Bereich  $Q_g = 1.8 \pm 0.3$  eV.

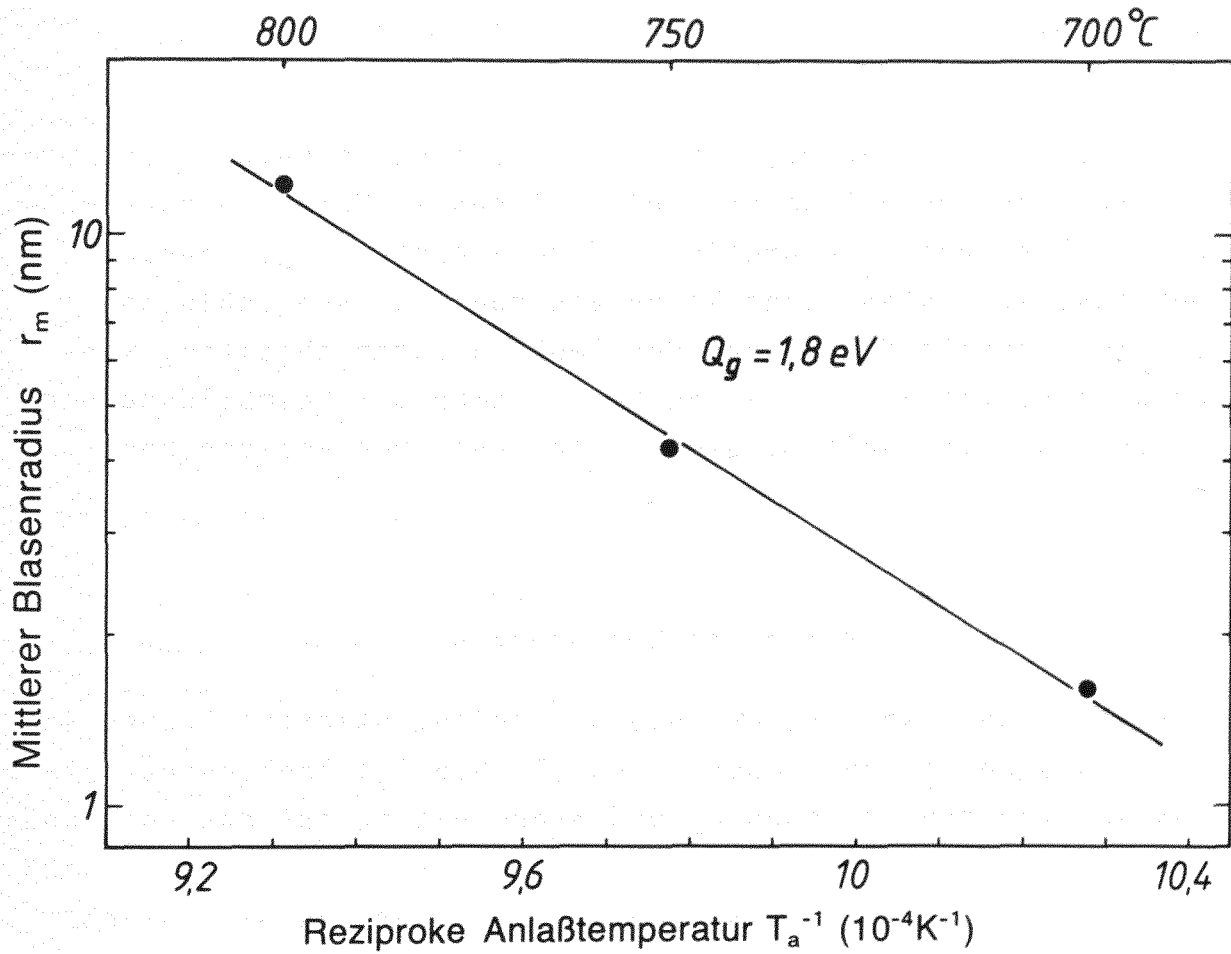


Abb. 18:

Arrheniusauftragung des mittleren Blasenradius.

( $C_{He} = 100$  appm,  $\sigma = 0$  MPa,  $t_a = 185$  h)

#### IV. Diskussion

Aufgabe der Untersuchungen zum Wachstum von Heliumblasen in Typ 316 Edelstahl war es, den bisher geringen Kenntnisstand über das Verhalten von Helium und Heliumblasen in Metallen zu erweitern und bestehende theoretische Modellvorstellungen anhand der Ergebnisse zu testen. Eine Reihe von qualitativen Schlüssen läßt sich bereits direkt aus den Beobachtungen ableiten, während andere, wie z.B. mögliche Mechanismen der Keimbildung und des Wachstums von Heliumblasen einer genaueren Analyse bedürfen.

##### 1. Kriechtests und Blasen an Korngrenzen

Man kann davon ausgehen, daß die bei heliumdotierten Proben in Kriechtests bei hohen Temperaturen ( $T > 0.5 T_m$ ) beobachtete starke Reduktion von Bruchdehnung  $\epsilon_R$  und Standzeit  $t_R$  auf das spannungsinduzierte Wachstum von Heliumblasen an Korngrenzen zurückzuführen ist /29,36,37,38,43/. Als Mechanismus für das Blasenwachstum kann die Agglomeration von Leerstellen angesehen werden, die aufgrund der Spannung in den Korngrenzen /44/ und durch Kriechverformung in der Matrix an Versetzungen gebildet werden /45/. Diese Schwächung der Korngrenzen wird sehr eindrucksvoll in Abb.8 illustriert, wo deutlich wird, daß die bevorzugte Keimbildung und das Wachstum von Heliumblasen an Korngrenzen, besonders an solchen, die senkrecht zur angelegten Spannung orientiert sind, die Bruchzeit der Probe bestimmen.

Als Einfluß des Heliums auf die Matrix führen eine Reihe von Autoren eine Verfestigung aufgrund der Behinderung der Versetzungsbewegung durch Heliumbläschen an /25,39/, was sich in einer verringerten Kriechrate und in einer erhöhten Dehngrenze beim Zugversuch zeigt /36,43/. Ein derartiger Effekt wurde bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Kriechtests nicht beobachtet. Vielmehr zeigten mit Ausnahme sehr kurzer Tests ( $\sigma > 120 \text{ MPa}$ ,  $t_R < 3 \text{ h}$ ) alle heliumdotierten Proben eine gegenüber dem heliumfreien Vergleichsmaterial etwa um den Faktor 2 bis 3 höhere mittlere Kriechrate  $\bar{\epsilon}$  ( $\bar{\epsilon} = \epsilon_R/t_R$ ) bzw. minimale Kriech-

rate  $\epsilon_{\min}$ . Allerdings wurde im Zugtest bei 1023 K eine erhöhte Dehngrenze beobachtet /46/. Außerdem ergab die von den übrigen Matrixblasen getrennte Auswertung von Heliumblasen an Versetzungen, daß nach Glühungen unter Spannung kein eindeutiger Unterschied zwischen beiden Größenverteilungen besteht. Es muß deshalb angenommen werden, daß es zu keinen Verbindungen zwischen Heliumblasen und Versetzungen über einen längeren Zeitraum kommt, und daß die Blasen kein ausgeprägtes Hindernis für die Versetzungsbewegung darstellen. Eine Erklärung für die gegenüber den heliumfreien Proben beobachtete erhöhte Kriechrate konnte nicht gefunden werden.

Der bei heliumdotierten Proben bei einer Spannung von etwa 85 MPa beobachtet Wechsel im Spannungsexponenten der Bruchzeiten wie auch in der Spannungsabhängigkeit der Bruchdehnung legt eine Änderung im Kriechmechanismus nahe. Möglicherweise besteht hier ein Zusammenhang mit der im Bereich dieser Spannung beobachteten bimodalen Größenverteilung der Heliumblasen in der Matrix.



## 2. Keimbildung der Heliumblasen

### 2.1. Keimbildung ohne Spannung

Bei Proben, die ohne äußere Spannung angelassen worden waren, wurde in allen Fällen eine einfache, monomodale Größenverteilung der Heliumblasen gefunden (siehe Abb. 9), wie sie auch in einer Reihe ähnlicher Experimente beobachtet wurde /13,20,25/. Aufgrund der durch die geringe Heliumlöslichkeit bedingten hohen Übersättigung besteht eine starke Tendenz des Heliums, sich beim Anlassen der Probe in Bläschen auszuschcheiden. Da sich die Nukleation der Blasen bzw. der Blasenkeime auf einer Größenskala abspielt, die von einem Elektronenmikroskop nicht mehr aufgelöst werden kann, entzieht sich dieser Prozess auch der direkten Beobachtung. Wie Release-Messungen zeigen /47/, muß eine heterogene Keimbildung angenommen werden, d.h., die Keime bilden sich im wesentlichen an Versetzungen, Stapelfehlern, Fremdatomen, Leerstellen oder inneren Oberflächen.

Theoretisch läßt sich die Nukleation der Heliumblasen durch einen allgemein anerkannten Keimbildungsmechanismus mit einer Komponente von übersättigten und beweglichen Teilchen (He-Atome) beschreiben /7,38,48,49/.

### 2.2. Keimbildung unter äußerer Spannung

Im Gegensatz zur monomodalen Blasenverteilung im Fall von Anlassen ohne äußere Spannung wurde bei einer Reihe von Proben nach Anlassen für mittlere Zeiten ( $10 \text{ h} \leq t_a \leq 100 \text{ h}$ ) unter mittleren Spannungen ( $60 \text{ MPa} \leq \sigma \leq 90 \text{ MPa}$ ) eine bimodale Blasenverteilung beobachtet (Abb. 12). Eine solche Verteilung kann als Hinweis auf einen zweistufigen Keimbildungsprozess angesehen werden, der in einem kürzlich von Trinkaus entwickelten Modell /30/ beschrieben wird. Dieses Modell beschreibt die Nukleation von Ausscheidungen bei Vorhandensein von zwei beweglichen und übersättigten Komponenten. Diese Komponenten sind im hier diskutierten Fall das implantierte Helium und Leerstellen. Die Leerstellenübersättigung ist dabei auf die Spannung und die Kriechverformung

während des Anlassens zurückzuführen, wo Leerstellen gebildet werden einmal an Korngrenzen /44,50/ und außerdem beim Klettern von Versetzungen bzw. beim Gleiten von Versetzungen, die einen Versetzungssprung enthalten /45/.

Unter den beschriebenen Bedingung (He- und Leerstellenübersättigung) ist ein zweistufiger Nukleationsprozess als generelles Phänomen anzusehen: In einem ersten Schritt werden zunächst kleine Heliumkluster ausgeschieden. Nach Zusammenbruch der Heliumübersättigung ist die erste Stufe der Keimbildung beendet. Die im ersten Schritt gebildeten Blasen sind dann als Embryos für die zweite Stufe der Nukleation anzusehen, nämlich die Bildung von Bläschen, die unter Spannung wachsen.

Nach sehr kurzen Anlaßzeiten wird nur ein ausgeprägtes erstes Maximum der bimodalen Verteilung beobachtet, während das zweite sich erst in einem "Schwanz" von großen Blasen andeutet. Diese Art der Blasenverteilung zeigt, daß nach kurzen Anlaßzeiten erst wenige Embryos die Keimbildungsbarriere überschritten haben, um als Blasen wachsen zu können. Nach langen Zeiten ( $t_a > 100h$ ) haben fast alle Blasen die Nukleationsbarriere überschritten oder sind weggeschrumpft, und somit ist in diesem Fall nur noch der zweite, wachsende Peak sichtbar. Bei kleinen Spannungen während des Anlassens ( $\sigma = 40$  und  $50$  MPa) wird keine bimodale Blasenverteilung beobachtet. Dieser Umstand könnte darauf zurückzuführen sein, daß infolge der sehr geringen Kriechrate die Leerstellenübersättigung zu gering ist um eine zweistufige Nukleation zu ermöglichen.

### 3. Wachstum der Heliumblasen

Sobald Blasenkeime ihre Nukleationsbarriere, d.h. einen kritischen Radius, überschritten haben, beginnt ihre Wachstumsphase. Für das Wachstum von Blasen können, je nach äußeren Umständen, wie Temperatur, Helium- oder Leerstellennachlieferung oder Blasengröße, eine ganze Reihe von Mechanismen in Frage kommen. Die Vielzahl der möglichen Modelle läßt sich für den hier zu diskutierenden Fall jedoch einschränken, wenn berücksichtigt wird, daß mit zunehmendem mittleren Blasenradius ein Rückgang der Blasendichte beobachtet wurde (s. Abb. 15 und 16a). Aus diesem Grunde kann z.B. ein Blasenwachstum durch Relaxation von Überdruckblasen, ein Wachstum durch Agglomeration von Helium und/oder Leerstellen als wachstumsbestimmender Prozess ebenso ausgeschlossen werden wie ein Wachstum durch plastische Verformung (Ausstoßen von Versetzungsringen).

Als mögliche Wachstumsmechanismen bleiben demnach noch die Ostwaldreifung (= Permeation von Helium zwischen benachbarten Blasen) und das Wachstum durch Blasenwanderung und anschließende Vereinigung von zwei sich treffenden Blasen (Koagulation).

Vor einer eingehenden Diskussion des im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Blasenwachstums sollen die möglichen Wachstumsmechanismen zunächst kurz vorgestellt werden. Da zu den Blasen an Korngrenzen aus bereits erwähnten Gründen keine quantitativen Messungen durchgeführt wurden, soll nicht näher auf diese Blasen eingegangen werden.

#### 3.1. Wachstumsmodelle

##### 3.1.1. Ostwaldreifung

Einer der möglichen Mechanismen für das Wachstum gasgefüllter Blasen ist die Ostwaldreifung. Voraussetzung für diesen Prozess ist, daß Helium aus einer Blase wieder in Lösung gehen kann, also eine gewisse Permeation (= Löslichkeit  $\times$  Diffusionskoeffizient von He) durch die Matrix besteht. Das Blasenwachstum selbst ist dann eine Folge erhöhter Heliumkonzentration nahe

der Oberfläche einer kleinen Blase und erniedrigter in der Nähe einer größeren, wobei infolge des Konzentrationsgradienten eine Heliumdiffusion von kleinen zu großen Blasen auftritt (Abb. 19). Der wachstumbestimmende Prozess ist somit die Permeation von Helium durch die Matrix.

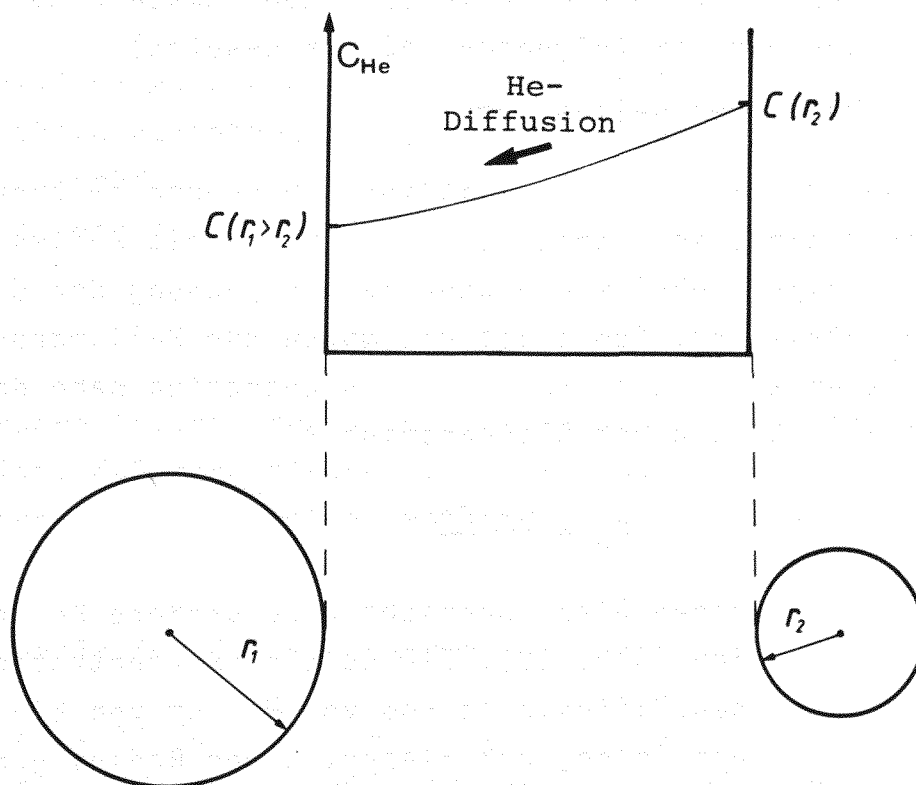


Abb. 19:  
Darstellung der Heliumdiffusion bei Ostwaldreifung

Ostwaldreifung wurde bisher ausschließlich beim Wachstum von Ausscheidungen in Festkörpern beobachtet, z.B. beim Wachstum von  $\gamma'$ -Ausscheidungen in Nickel-Aluminium-Legierungen /51/. Für das Wachstum von Heliumblasen durch Reifung existieren lediglich einige theoretische Ansätze /8,9/, die im folgenden kurz erläutert werden sollen.

Nach dem Sievertschen Gesetz gilt für die Konzentration  $C$  des unter einem äußeren Gasdruck  $p$  gelösten Heliums:  $C = Kp$

Für die Löslichkeit  $K$  kann dabei eingesetzt werden /53/

$$K = \frac{(2\pi)^{3/2} h^3}{m^{3/2} (kT)^{5/2}} \exp\left(-\frac{\Delta H}{kT}\right) \exp\left(\frac{\Delta S}{k}\right).$$

$\Delta H$  = Bildungsenthalpie von He im Gitter

$\Delta S$  = Änderung der Entropie des Gitters durch Einbringen von He (aufgrund fehlender theoretischer Abschätzungen wird im folgenden  $\Delta S = k$  gesetzt)

$m$  = Masse des Heliumatoms

Nimmt man an, daß Heliumblasen mit ihrer Umgebung im thermischen Gleichgewicht sind, so beträgt in einer Blase mit Radius  $r$  der Gasdruck  $p = 2\gamma/r$ , wobei  $\gamma$  die Oberflächenspannung der die Blase umgebenden Matrix ist. Somit ist die durch den Heliumdruck in der Blase verursachte gelöste Heliumkonzentration nahe der Blasenoberfläche abhängig vom Blasenradius  $r$

$$C_r = K \cdot \frac{2\gamma}{r}$$

d.h. nahe einer kleinen Blase herrscht eine größere Konzentration als nahe einer großen (Abb. 19). Ein solcher Konzentrationsgradient induziert einen Diffusionsstrom von Helium von kleinen zu großen Blasen mit der Folge, daß Blasen, deren Radius größer als ein kritischer Radius  $r_c$  ist, wachsen, während die übrigen schrumpfen. Die Größe von  $r_c$  ergibt sich aus der mittleren in der Matrix gelösten Heliumkonzentration  $C_m$ :

$$r_c = 2\gamma K / C_m.$$

Die Anzahl  $N$  der Heliumatome in einer Blase mit Radius  $r$  ändert sich mit der Zeit entsprechend

$$\frac{dN}{dt} = 4\pi r D_{He} (C_m - C_r) \quad (1)$$

$D_{He}$  = Volumendiffusionskoeffizient für He.

Unterstellt man ideales Gas und thermisches Gleichgewicht so gilt für eine Heliumblase

$$8\pi\gamma r^2/3 = NkT.$$

Differentiation nach der Zeit und Einsetzen in (1) ergibt dann

$$\frac{dr}{dt} = \frac{3}{2} kTD_{\text{He}}K \left( \frac{1}{r_c} - \frac{1}{r} \right)$$

Da die Entwicklung der Größenverteilung mit der Zeit skaliert gilt die obige Beziehung für jeden beliebigen Radius. Setzt man  $r = 2r_c$ , so erhält man durch Integration die zeitliche Entwicklung von  $r_c$  und somit auch die von  $r_m$ :

$$r_m^2 \propto kTD_{\text{He}}Kt_a$$

Eine genauere Analyse der Größenverteilung ergibt /9/, daß  $r_c = r_m$  ist, daß also Blasen, deren Radius kleiner als der mittlere Radius ist, schrumpfen, während die übrigen wachsen.

### 3.1.2. Modelle für Blasenwanderung

Ein weiterer, in der Literatur häufig diskutierter Mechanismus für das Wachstum von Heliumblasen ist die Wanderung von Bläschen mit anschließender Koagulation. Dieser Wachstumsprozess wird bei Spaltgasblasen in  $\text{UO}_2$  beobachtet /16,17,18/ aber auch in Metallen /19,20,23,24,52/. Die atomaren Prozesse, die in Festkörpern eine Bewegung von Blasen als Ganzes ermöglichen /12,13, 14,15/ sollen im folgenden kurz beschrieben werden.

Ausgangspunkt für die Überlegungen sei eine kugelförmige Blase mit Radius  $r$ , dem Schwerpunkt  $S$  und einem He-Gasdruck  $p_r = 2\gamma/r$ . Um den Schwerpunkt und somit die Blase zu bewegen, müssen Atome der Blasenoberfläche von einer Seite der Blase zur anderen transportiert werden (Abb. 20), was einmal geschehen kann über die Blasenoberfläche (Oberflächendiffusion  $D_o$ ), durch die Umgebung der Blase (Volumendiffusion  $D_v$ ) und durch Diffusion von Matrixatomen durch die Gasphase ( $D_g$ ). Die 3-dimensionale Diffusion der



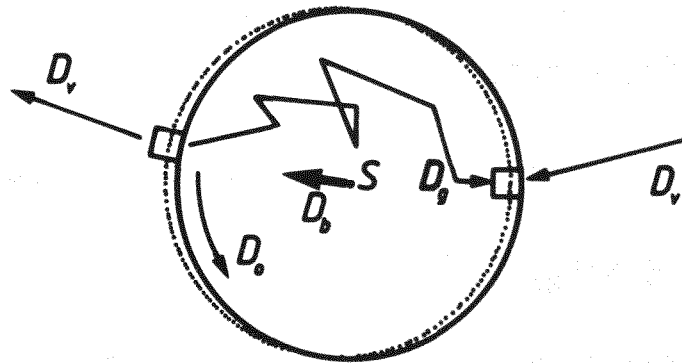


Abb. 20:  
Skizzierte Zusammenfassung der Wanderungsmechanismen

Blase ( $D_b$ ) kann somit als Zufallsbewegung des Schwerpunktes S (random walk) beschrieben werden:

$$D_b = \frac{1}{6} \Gamma_b \lambda_b^2 \quad (3)$$

wobei  $\Gamma_b$  die Sprungfrequenz der Blase und  $\lambda_b$  ihre Sprungweite bedeuten.

(a) Die Diffusion auf der Blasenoberfläche kann beschrieben werden als

$$D_o = \frac{1}{4} \Gamma_o \lambda^2 \quad (4)$$

wobei  $\Gamma_o$  die Sprungfrequenz der diffundierenden Teilchen und  $\lambda$  ihr Abstand bedeuten. Da die Anzahl der an der Diffusion beteiligten Oberflächenatome  $4\pi r^2/\lambda^2$  beträgt gilt nun für die Sprungfrequenz der Blase infolge von Oberflächendiffusion:

$$\Gamma_b^o = \Gamma_o \cdot \frac{4\pi r^2}{\lambda^2} \quad (5)$$

Um den Schwerpunkt der Blase um einen bestimmten Betrag zu verschieben müssen insgesamt  $4\pi r^3/3\Omega$  Atome ( $\Omega$  = Atomvolumen) um den gleichen Betrag in die entgegengesetzte Richtung bewegt werden, woraus für die Sprungweite  $\lambda_b^o$  der Blase folgt:

$$\lambda_b^o = \lambda \cdot \frac{3\Omega}{4\pi r^3} \quad (6)$$

Einsetzen von (5) und (6) in (4) ergibt dann für den Diffusionskoeffizienten einer Blase bei Oberflächendiffusion:

$$D_b^o = \frac{3D_o \Omega^2}{\lambda^2 2\pi r^4}. \quad (7)$$

(b) Im Fall von Volumendiffusion der beweglichen Atome durch die Umgebung der Blase gelten zu (a) analoge Beziehungen. Mit dem Volumendiffusionskoeffizienten  $D_v = 1/6 \cdot \Gamma_v \lambda^2$ , der Sprungfrequenz der Blase  $\Gamma_b^v = \Gamma_v 4\pi r^3 / 3\Omega$  und der Sprungweite der Blase  $\lambda_b^v = \lambda 3\Omega / 4\pi r^3$  erhält man durch Einsetzen in (3) den Diffusionskoeffizienten der Blase im Fall von Volumendiffusion:

$$D_b^v = \frac{3D_v \Omega}{4\pi r^3}. \quad (8)$$

(c) Mit Ausnahme der unterschiedlichen Dichte zwischen Gasphase und Matrix verläuft die Blasenwanderung aufgrund von Diffusion von Matrixatomen durch die Gasphase analog zur Volumendiffusion. Der Diffusionskoeffizient im Gas beträgt  $D_g = 1/6 \cdot \Gamma_g \lambda_g^2$  und die Sprungfrequenz der Blase  $\Gamma_b^g = \Gamma_g (\frac{4}{3}\pi r^3) \Omega_g^{-1}$ . Dabei ist  $\Omega_g$  das Volumen des diffundierenden Atoms in der Gasphase  $\Omega_g = kT/\alpha_g p_g$ , wobei  $p_g$  der Partialdruck des Atoms und  $\alpha_g$  die Abweichung vom Gleichgewicht ( $\alpha_g \lesssim 1$ ) bedeuten. Somit ergibt sich für die Blasendiffusion aufgrund von Materietransport durch die Gasphase:

$$D_b^g = D_g \frac{\alpha_g p_g^3 \Omega^2}{kT 4\pi r^3}. \quad (9)$$

Da die Diffusion von Atomen durch die Gasphase druckabhängig ist, gilt für Gleichgewichtsblasen ( $p_r = 2\gamma/r$ ):  $D_g \propto r$  und somit

$$D_b^g \propto r^{-2}.$$

Die oben beschriebenen drei unterschiedlichen Mechanismen, aufgrund derer eine Blasenwanderung ablaufen kann, unterscheiden sich untereinander im wesentlichen durch ihre unterschiedliche Abhängigkeit von der Blasengröße, so daß eventuell in einer Probe Blasen unterschiedlicher Größe aufgrund verschiedener Mechanismen wandern können.

Damit Blasen, die sich auf ihrer Wanderung treffen, sich vereinigen können, muß die Koagulation zu einer Energieabsenkung führen, was im folgenden untersucht werden soll. Unter der Annahme, daß bei einer Gleichgewichtsblase keine elastischen Verzerrungen existieren, läßt sich die Koagulation zweier Blasen in 3 Schritten beschreiben. Die Radien der beiden Blasen seien  $r_1$  und  $r_2$ . Der erste Schritt besteht in der Koagulation bei konstantem Volumen, d.h.  $V_1 + V_2 = V_3$ ,  $p_3 = 2\gamma/r_3 + \Delta p$ ; es herrscht also ein Überdruck  $\Delta p$ . Bei diesem ersten Schritt wird Oberflächenenergie  $\Delta G_0$  gewonnen, da  $r_3^2 < r_1^2 + r_2^2$ . Die zweite Stufe besteht aus einer elastischen Volumenrelaxation. Im dritten Schritt, der eine gewisse Zeit dauern kann, bildet sich wieder thermisches Gleichgewicht aus, d.h.  $p_4 = 2\gamma/r_4$ , woraus folgt, da ideales Gas angenommen wird, daß  $r_4^2 = r_1^2 + r_2^2$ , die ursprüngliche Oberfläche also wieder erreicht ist ( $\Delta G_0^{\text{ges}} = 0$ ). Da außerdem die elastischen Verzerrungen wieder verschwinden, ist auch  $\Delta G_{e1}^{\text{ges}} = 0$ . Das expandierende Gas leistet Arbeit

$$\Delta G_{\text{gas}} = - \int_{r_3}^{r_4} p dV < 0$$

wodurch insgesamt bei einer Koagulation die Gesamtenergie abgesenkt wird, während sich das Gesamtvolumen vergrößert ( $\rightarrow$  Schwellen).

Aus den Diffusionskoeffizienten  $D_b$  der drei Wanderungsmechanismen läßt sich außerdem das zeitliche Wachstum des mittleren Blasenradius  $r_m$  bestimmen. Betrachtet man ein System von beweglichen und koagulierenden Blasen der Dichte  $\rho_b$ , so ergibt sich für die zeitliche Änderung der Dichte:

$$\frac{d\rho_b}{dt} = 16\pi\bar{D}_b r_m \rho_b^2 \quad (10)$$

wobei  $\bar{D}_b$  der Diffusionskoeffizient einer Blase mit mittlerem Radius  $r_m$  ist. Die Dichte von Heliumblasen  $\rho_b$  beträgt für Gleichgewichtsblasen und unter Annahme von idealem Gas

$$\rho_b = \frac{C_{He}}{N_m} = \frac{3kTC_{He}}{8\pi\gamma r_m^2} \quad (11)$$

$C_{He}$  = Implantierte Heliumkonzentration

$N_m$  = mittlere Anzahl He-Atome pro Blase.

Setzt man die zeitliche Ableitung von (11) in (10) ein, so erhält man die zeitliche Änderung des mittleren Blasenradius

$$\frac{dr_m}{dt} \propto \frac{3kT\bar{D}_b C_{He}}{\gamma} \propto C_{He} \cdot D_b$$

Durch Integration erhält man schließlich für das zeitliche Wachstum ein Potenzgesetz der Form

$$r_m \propto (C_{He} \cdot t_a)^{1/n} \quad (12)$$

wobei für die verschiedenen Diffusionsmechanismen folgende Werte für  $n$  zu erwarten sind:

Oberflächendiffusion  $D_o$  :  $n = 5$

Volumendiffusion  $D_v$  :  $n = 4$

Gastransport  $D_g$  :  $n = 3$

Hält man die Heliumkonzentration konstant, so sollte zusammen mit der im vorigen Abschnitt für Ostwaldreifung gefundene Zeitabhängigkeit  $r_m^2 \propto t_a$  bei geeigneten Meßdaten auf den physikalischen Wachstumsmechanismus geschlossen werden können.

### 3.2. Vergleich des beobachteten Blasenwachstums mit Modellen

Mit den im vorigen Abschnitt besprochenen theoretischen Modellen sollte es möglich sein, aus den experimentellen Ergebnissen Auskunft über den Wachstumsmechanismus der Heliumblasen zu erhalten. Als erster Ansatzpunkt bietet sich hier die beobachtete zeitliche Entwicklung des mittleren Blasenradius an. Experimentell wurden für das zeitliche Wachstum des mittleren Blasenradius entsprechend  $r_m \propto t_a^{1/n}$ , je nach angelegter äußerer Spannung, Werte für  $n$  zwischen  $3.3 \geq n \geq 2.6$  bestimmt (s.S. 25), die auf ein Blasenwachstum durch Wanderung und Koagulation schließen lassen. Die Beweglichkeit der Blasen kommt danach aufgrund von Materietransport durch die Gasphase zustande (s.S. 41). Nachdem aufgrund unterschiedlicher Meßmethoden bereits Blasenwanderung über Volumendiffusion /25,28/ und Oberflächendiffusion /26/ als Wachstumsmechanismen von Heliumblasen in Edelmählen angenommen wurden, wäre dieses Ergebnis ein weiterer Vorschlag.

Aufgrund der bereits auf S. 9 angesprochenen prinzipiellen Schwierigkeiten, den mittleren Radius sehr kleiner Blasen richtig zu bestimmen, sind die für den Exponenten  $n$  ermittelten Werte und der daraus abgeleitete Wachstumsmechanismus unter Vorbehalt zu betrachten. Die experimentell für  $n$  bestimmten Werte  $3.3 \geq n \geq 2.6$  müssen somit als tendenziell zu groß angesehen werden, so daß auch ein zeitliches Wachstum  $r_m \propto t_a^{1/2}$  - das würde Blasenwachstum durch Ostwaldreifung bedeuten - nicht ausgeschlossen werden kann. Auf der anderen Seite muß als Folge dieser Überlegungen ein Wachstum durch Blasenwanderung infolge von Volumendiffusion ( $n = 4$ ) oder Oberflächendiffusion ( $n = 5$ ) als unwahrscheinlich angesehen werden. Nicht ganz ausgeschlossen werden kann allerdings das Vorliegen von zwei gleichzeitig wirkenden Prozessen, worauf auch einige Beobachtungen hindeuten, die an späterer Stelle noch diskutiert werden sollen.

Aufgrund der guten Übereinstimmung zwischen der gemessenen und der anhand von Blasengröße und Heliumkonzentration berechneten Blasendichte (s.S. 27) läßt die zeitliche Entwicklung der Blasendichte ähnliche Ergebnisse erwarten, wie der mittlere Radius der Blasen. Vernachlässigt man Heliumverluste und setzt ideales Gas

und thermisches Gleichgewicht voraus, so gilt entsprechend Gl. (11) von S. 43 für die Blasendichte:

$$\rho_b = \frac{C_{He}}{N_m} = \frac{3kTC_{He}}{8\pi\gamma r_m^2} \propto \frac{1}{r_m^2}$$

Kombiniert man dieses Ergebnis mit dem auf S. 43 angegebenen Zeitverhalten des mittleren Blasenradius  $r_m \propto t_a^{1/n}$  so ergibt sich für die besprochenen Wachstumsmechanismen die Dichte der Heliumblasen als Funktion der Anlaßzeit zu

$$\rho_b \propto t_a^{-2/n}$$

Wie Abb. 16a auf S. 27 zeigt, wird das Zeitverhalten der Blasendichte für  $t_a \leq 100$  h recht gut durch  $\rho_b \propto t_a^{-1}$  beschrieben, was ein Wachstum durch Ostwaldreifung nahelegt. Aufgrund der Streuung der experimentellen Werte und der für  $t_a \geq 100$  h gefundenen Abweichung sollte die Aussage jedoch nicht überbewertet werden.

Ein weiterer Anknüpfungspunkt an die Theorie bietet sich anhand der über die Temperaturabhängigkeit des mittleren Blasenradius bestimmten Aktivierungsenergie  $Q_g = 1.8 \pm 0.3$  eV an (s.S. 30). Ein Vergleich der gemessenen Werte mit den für einzelne Wachstumsprozesse erwarteten Größen sollte ebenfalls Hinweise auf den Mechanismus des Blasenwachstum liefern. Aus Mangel an zuverlässigen Daten für den verwendeten Werkstoff (SS 316) mußte in den meisten Fällen auf Datenmaterial von Ni bzw. Fe zurückgegriffen werden, was zu einer gewissen Beeinträchtigung der Aussagefähigkeit führt.

Da die Abhängigkeit des mittleren Blasenradius von der Anlaßzeit ein Wachstum durch Ostwaldreifung nicht ausschließt, soll zunächst dieser Mechanismus behandelt werden. In diesem Fall gilt nach S. 39 die Beziehung

$$r_m^2 \propto kTD_{He}Kt_a.$$



Als Aktivierungsenergie für diesen Prozess erwartet man also die Summe von Diffusionsenergie und Lösungswärme von Helium in der Matrix. Da allerdings bisher keine dieser Energien für Edelstahl einigermaßen zuverlässig berechnet oder gemessen wurde, muß hier auf Daten von Ni zurückgegriffen werden. Die Lösungswärme  $\Delta H$  von He in Ni setzt sich zusammen aus der Bildungsenergie einer Leerstelle  $Q_V^F = 1.7 \text{ eV}$  /54/ bzw.  $1.8 \text{ eV}$  /55/ und der Bildungsenergie eines He-Atoms in einer bereits bestehenden Leerstelle  $Q_{He,V}^F = 1.36 \text{ eV}$  /56/. Zusammen mit der Aktivierungsenergie für die Heliumdiffusion  $Q_{He}^{diff} = 0.81 \text{ eV}$  /46/ beträgt somit die Aktivierungsenergie für Ostwaldreifung  $Q_g^{OR} = 3.86 \text{ eV}$ . Dieser Wert steht entsprechend

$$e^{2Q_g} \propto e^{Q_{He}^{diff}} \cdot e^{Q_V^F + Q_{He,V}^F}$$

in guter Übereinstimmung mit dem als Aktivierungsenergie für den mittleren Blasenradius ermittelten Wert  $Q_g = 1.8 \pm 0.3 \text{ eV}$ .

Obwohl noch keine zuverlässigen Daten für die Heliumdiffusion in Typ 316 Edelstahl vorliegen, deuten neuere Messungen auf eine niedrigere Aktivierungsenergie als in Ni hin /57/. Außerdem zeigen Abschätzungen aufgrund von Diffusionsmessungen, daß die angenommene Bildungsenergie eines He-Atoms in einer vorhandenen Leerstelle ( $Q_{He,V}^F = 1.36 \text{ eV}$ ) als zu groß angenommen werden muß /58/. Beide Korrekturen würden die Wahrscheinlichkeit des Blasenwachstums durch Ostwaldreifung noch erhöhen.

Das Blasenwachstum durch Wanderung infolge von Materietransport durch die Gasphase konnte aus der zeitlichen Entwicklung des mittleren Blasenradius ebenfalls nicht ausgeschlossen werden. Daher soll auch die Aktivierungsenergie für diesen Prozess mit der gemessenen Größe verglichen werden. Für diesen Wachstumsmechanismus gilt die Beziehung

$$r_m^3 \propto D_g t_a$$

Wobei der Diffusionskoeffizient  $D_g$  der Gasphase durch die Sublimationswärme  $Q_s$  thermisch aktiviert ist. Mit Daten für Ni ( $Q_s = 4.4 \text{ eV}$ ) bzw. für Fe ( $Q_s = 4.3 \text{ eV}$ ) /59/ liegt die Aktivie-

rungsenergie für Blasenwanderung infolge von Materietransport durch die Gasphase deutlich niedriger als die für das Blasenwachstum gemessene Aktivierungsenergie von  $3 \cdot (1.8 \pm 0.3) \text{ eV} = 5.4 \pm 0.9 \text{ eV}$ .

Da allerdings die Aktivierungsenergie für die Blasenwanderung noch fast im Bereich der für das Wachstum von  $r_m$  abgeschätzten Fehlers liegt, und andererseits die Sublimationswärme von Edelstahl auch größer sein kann als die von Ni oder Fe, kann eine Beimischung von Blasenwanderung zum Wachstum nicht ausgeschlossen werden. Da der zur Messung der Aktivierungsenergie verwandte Temperaturbereich klein und da außerdem nur 3 Meßpunkte vorhanden sind, könnten beide Prozesse kaum getrennt werden.

Die beiden anderen Mechanismen für Blasenwanderung (Volumen- und Oberflächendiffusion), die schon aufgrund des zeitlichen Blasenwachstums als sehr unwahrscheinlich angesehen werden mußten, scheiden bei einem Vergleich der Aktivierungsenergien völlig aus. So steht z.B. im Fall von Blasenwanderung über Volumendiffusion aufgrund der Beziehung

$$r_m^4 \propto D_v t_a$$

( $D_v$  ist der Volumendiffusionskoeffizient) der Aktivierungsenergie für Selbstdiffusion ( $Q_s = 2.9 \text{ eV}$  für Ni /60/) eine gemessene Energie für das Blasenwachstum von  $4 \cdot (1.8 \pm 0.3 \text{ eV}) = 7.2 \pm 0.2 \text{ eV}$  gegenüber. Dieser Mechanismus kann damit, ebenso wie die Wanderung infolge von Oberflächendiffusion, wo eine noch größere Diskrepanz auftritt, als wachstumsbestimmender Mechanismus ausgeschlossen werden.

Als vierter Anknüpfungspunkt für Überlegungen zum Blasenwachstum bietet sich die Abhängigkeit der mittleren Blasengröße von der implantierten Heliumkonzentration an (s.S. 28,29). Für eine feste Anlaßzeit - sie betrug bei den Experimenten 185 h - wird im Fall von Blasenwachstum durch Wanderung und Koagulation eine Abhängigkeit der Blasengröße von der Heliumkonzentration entsprechend

$$r_m \propto C_{\text{He}}^{1/n}$$

erwartet (entsprechend Gl. 12 auf S. 43). Bei Vorliegen von Ostwaldreifung sollte der mittlere Blasenradius unabhängig von der Heliumkonzentration sein (s.S. 39).

Experimentell wird nach fester Anlaßzeit eine von der Heliumkonzentration unabhängige mittlere Blasengröße beobachtet, was als ein starkes Indiz für Ostwaldreifung angesehen werden muß. Aufgrund des mit zunehmendem Heliumgehalt eher abnehmenden Blasenradius muß außerdem angenommen werden, daß die aufgrund der übrigen Experimente nicht auszuschließende Beimischung von Blasenwanderung sicherlich unbedeutend ist.

Die aus dem mittleren Blasenradius gewonnenen Aussagen werden durch die Abhängigkeit der Blasendichte von der Heliumkonzentration untermauert, die, wie bei Reifung erwartet, etwa entsprechend  $C_{He}$  verläuft (s. Abb. 17b, S. 29). Die experimentell gefundene Abhängigkeit des mittleren Blasenradius und der Blasendichte von der implantierten Heliumkonzentration weisen also eindeutig auf ein durch Ostwaldreifung dominiertes Blasenwachstum hin.

Von den bisher besprochenen Ergebnissen schließen die experimentell bestimmte Zeitabhängigkeit des mittleren Blasenradius und der Blasendichte ein Wachstum durch Ostwaldreifung nicht aus, während die gemessene Aktivierungsenergie und der Einfluß der Heliumkonzentration auf die Blasengröße ein Wachstum durch Ostwaldreifung fordern und lediglich eine geringe Beimischung von Blasenwanderung zulassen. In einem Punkt muß allerdings eine kritische Anmerkung gemacht werden, was das Blasenwachstum durch einen Reifungsprozess angeht. So wurde bei den ohne äußere Spannung geglühten Proben eine Größenverteilung der Heliumblasen gemessen, die nicht der bei Wachstum durch Ostwaldreifung erwarteten entspricht /9/. Bei einem Reifungsprozess sollte z.B. der maximale Blasenradius  $2r_m$  betragen und die häufigste Blasengröße (Maximum der Verteilung) größer als  $r_m$  sein. Die gemessenen Verteilungen zeigen jedoch maximale Radien von bis zu  $4r_m$  während der häufigste Radius immer kleiner als  $r_m$  ist. Die experimentell beobachteten Größenverteilungen entsprechen somit solchen, wie sie für ein Wachstum durch Blasenwanderung berechnet /13,52/ und z.B. von Tyler und Goodhew bei Heliumblasen in Nb /52/ und Nb-1%Zr

/20/ beobachtet wurden, wo ein Wachstum durch Blasenwanderung und Koagulation angenommen wird.

Da die Größenverteilung der Blasen eine direkte Folge des Wachstumsmechanismus darstellt, lassen die Beobachtungen bei kleinen Blasen auf einen gewissen Beitrag von Blasenwanderung und Koagulation schließen. Aufgrund der übrigen experimentellen Befunde muß allerdings im untersuchten Temperaturbereich zwischen 973 K und 1073 K Ostwaldreifung als wachstumsbestimmender Prozess angesehen werden.

Eine weitere Möglichkeit, das von der erwarteten Größenverteilung abweichende Verhalten zu erklären, wäre die Annahme von Dragging- Effekten (= Mitschleppen von Blasen durch Versetzungen), was auch die bei hohen Spannungen ( $\sigma > 80$  MPa) auftretenden zum Teil sehr großen Blasen erklären könnte. Gegen eine solche Annahme spricht allerdings, daß bei solchen Proben der mittlere Radius von Blasen an Versetzungen sich nur unbedeutend von denen in der übrigen Matrix unterschied (s.S. 19). Außerdem zeigten implantierte Proben eine gegenüber heliumfreien Proben erhöhte Kriechrate  $\epsilon$ , was gegen eine starke Wechselwirkung zwischen Blasen und Versetzungen spricht.

### 3.3. Vergleich mit Messungen anderer Autoren

An dieser Stelle soll noch kurz auf einige Arbeiten eingegangen werden, die sich mit dem Wachstum von Heliumblasen nach Implantation befassen. Um eine gewisse Vergleichbarkeit mit den vorliegenden Ergebnissen zu gewährleisten, wurden nur Arbeiten an Fe-Ni-Cr-Legierungen gewählt, wobei allerdings aufgrund dieser Auswahl nur noch drei Arbeiten bekannt sind. In diesen Arbeiten wird durchweg Blasenwachstum durch Wanderung und Koagulation angenommen und Wachstum durch Reifung wegen der sehr geringen Löslichkeit des Heliums abgelehnt. Die Vergleichsmöglichkeiten sind jedoch aufgrund unterschiedlicher Materialien und Versuchsbedingungen bzw. fehlender Informationen recht schwierig.

In der Arbeit von Braski, Schroeder und Ullmaier /25/ wird aus der zeitlichen Entwicklung der Blasengröße in einer sehr reinen ternären Modellegierung (Fe-17%Cr-17%Ni) aufgrund von  $r_m \propto t_a^{1/4}$  ein Wachstum durch Wanderung (durch Volumendiffusion) und Koagulation als wahrscheinlichster Mechanismus angenommen. Auf der anderen Seite zeigen die Meßwerte allerdings eine starke Streuung - die mittleren Blasenradien verlaufen für  $t_a \geq 60$  h sogar gemäß  $r_m \propto t_a^{1/2}$  - und sind somit in ihrer Aussagefähigkeit stark eingeschränkt.

Die von Walker /28/ aufgrund direkter TEM-Beobachtungen gefundene Wanderung von He-Bläschen steht bei genauerer Betrachtung nicht in unmittelbarem Widerspruch zu den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit. So wurde hier ein anderer Stahl benutzt (Nb-stabilisierter 20%Cr-25%Ni-Stahl); andererseits lagen auch verschiedene Versuchsbedingungen vor. So wurde die He-Implantation mit monoenergetischen  $\alpha$ -Teilchen (20 keV) vorgenommen und außerdem wurden die Proben in abgedünntem Zustand getempert. In solchen Proben ist jedoch ein Blasenwachstum durch Ostwaldreifung nicht möglich, da aufgrund des schmalen Tiefenprofils des implantierten Heliums /32/ und der dünnen Probe mit großen He-Verlusten an die Probenoberfläche zu rechnen ist.

Untersuchungen von Smidt und Pieper /26/ sind mit der vorliegenden Arbeit am ehesten vergleichbar. Hier wurde nach homogener He-Implantation in Typ 316 Edelstahl zwischen 1073 und 1373 K

die Aktivierungsenergie für das Blasenwachstum bestimmt. Die angegebenen Daten ergeben eine Aktivierungsenergie von etwa 0.9 eV, also nur die Hälfte des im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Wertes (s.S. 30). Diese Ergebnisse legen Blasenwachstum durch Wanderung über Oberflächendiffusion nahe. Ein Vergleich mit der vorliegenden Arbeit würde darauf hindeuten, daß Heliumblasen in Edelstahl für  $T_a > 1073$  K über einem Mechanismus mit geringerer Aktivierungsenergie ( $Q_g = 0.9$  eV) wachsen als bei niedrigeren Temperaturen ( $T_a \leq 1073$  K,  $Q_g = 1.8 \pm 0.3$  eV). Ein solches Verhalten kann nur erklärt werden, wenn man annimmt, daß bei hohen Temperaturen ein zunehmender Bruchteil des in Lösung befindlichen Heliums an Korngrenzen oder aus der Probe entkommt. Durch einen solchen Prozess wird aber die mittlere gelöste Heliumkonzentration abgebaut (s.S. 38) und ein Wachstum durch Ostwaldreifung ist nicht mehr möglich. Andererseits ist auch nicht auszuschließen, daß aufgrund der von Smidt und Pieper verwendeten kurzen Anlaufzeit ( $t_a = 1$  h) und der sich daraus ergebenden kleineren Blasengröße noch eine erhöhte Beweglichkeit der Blasen besteht.



## V. Zusammenfassung

In jüngster Zeit finden Eigenschaftsänderungen, die durch die Anwesenheit von Helium in Metallen und Legierungen hervorgerufen werden, steigendes Interesse, da dieses unlösliche Edelgas in Strukturwerkstoffen von zukünftigen nuklearen Energiesystemen in beträchtlichen Konzentrationen gebildet werden wird. Obwohl die Ursachen für die beobachteten Materialverschlechterungen (Hochtemperaturversprödung) qualitativ bekannt sind, scheitert ein tieferes Verständnis der Vorgänge an dem Mangel an Grundlagendaten über das Verhalten von Helium in Metallen. In der vorliegenden Arbeit wurde deshalb die Bildung von Heliumbläschen erstmals systematisch und quantitativ in einer Modellegierung (Edelstahl AISI 316) als Funktion der maßgebenden Parameter untersucht. Dabei wurden Folienproben bei 300 K homogen mit 100 appm Helium implantiert und anschließend bei 1023 K unter verschiedenen Spannungen geglüht. Einige Proben wurden unter gleichen Bedingungen einem Kriechtest bis zum Bruch unterzogen. Zusätzlich wurden Proben mit unterschiedlichen Heliumkonzentrationen zwischen 10 und 300 appm implantiert und anschließend für 185 h ohne Spannung geglüht. Bei einer dritten Gruppe von Proben wurde der Einfluß der Anlaßtemperatur auf das Blasenwachstum untersucht.

Nach dem Anlassen wurden die Proben im TEM untersucht und anschließend der mittlere Radius, die Größenverteilung und die Dichte der Heliumblasen bestimmt. Die Ergebnisse lassen sich in folgenden Punkten zusammenfassen.

- Bei den Kriechtests wurde als Folge des implantierten Heliums eine starke Reduktion sowohl der Standzeit als auch der Bruchdehnung gemessen, die mit einem Wechsel vom duktilen zum interkristallinen Sprödbbruch verbunden war. Die Hauptursache für diese Versprödung sind Heliumbläschen in den Korngrenzen der Legierung. Sowohl der Spannungsexponent der Standzeit als auch die Spannungsabhängigkeit der Bruchdehnung wiesen bei etwa 85 MPa eine starke Änderung auf.

- Es fällt auf, daß in diesem Bereich auch eine bimodale Größenverteilung der Heliumblasen in der Matrix der Legierung beobachtet wird. Sie tritt im Spannungsbereich  $60 \text{ MPa} \leq \sigma \leq 90 \text{ MPa}$  und für Anlaßzeiten  $10 \text{ h} \leq t_a \leq 100 \text{ h}$  auf und wurde auf einen zweistufigen Keimbildungsprozeß zurückgeführt, der allgemein bei der Ausscheidung von zwei beweglichen und übersättigten Komponenten auftreten sollte. Im vorliegenden Fall sind diese beiden Komponenten das implantierte Helium und die infolge der äußeren Spannung und der Kriechverformung in Übersättigung vorliegenden Leerstellen.
- Als Mechanismus für das Wachstum der Heliumblasen in der Matrix legten die Meßergebnisse Ostwaldreifung nahe. Ein Wachstum durch Reifung stand in guter Übereinstimmung mit der gemessenen Abhängigkeit des mittleren Blasenradius und der Blasendichte von der Anlaßzeit, der Anlaßtemperatur und der Heliumkonzentration. Eine Beimischung von Blasenwanderung und Koagulation zum Wachstum konnte zwar nicht ausgeschlossen werden, sollte aber aufgrund der Meßergebnisse klein sein. Demnach stellt die gemessene Aktivierungsenergie für Ostwaldreifung  $2Q_g = 3,6 \pm 0,6 \text{ eV}$  die Aktivierungsenergie für die Permeation von Helium in Typ 316 Edelstahl dar.
- Ein Vergleich der gemessenen Blasendichte mit berechneten Werten, die aus der implantierten Heliumkonzentration, der gemessenen Größenverteilung und der Relation zwischen Gasdruck und Teilchendichte in einer Blase gewonnen wurden, zeigt daß sich das implantierte Helium vollständig in sichtbare Blasen ausscheidet.

#### IV. Anhang

##### 1. Zusammenstellung der ohne äußere Spannung geglühten Proben

| Probe<br>Nr. | $C_{He}$<br>[appm] | $T_a$<br>[K] | $t_a$<br>[h] | $\rho_b$<br>[m <sup>-3</sup> ] | $r_m$<br>[nm] | Bemerkungen                           |
|--------------|--------------------|--------------|--------------|--------------------------------|---------------|---------------------------------------|
| 1            | 100                | 1023         | 0.1          | ?                              | ?             | nur sehr wenige<br>Blasen beobachtbar |
| 2            | "                  | "            | 1            | $1.0 \cdot 10^{22}$            | 1.01          |                                       |
| 3            | "                  | "            | 10           | $4.2 \cdot 10^{21}$            | 1.79          |                                       |
| 4            | "                  | "            | 100          | $8.0 \cdot 10^{20}$            | 3.29          |                                       |
| 5            | "                  | "            | 1090         | $5.2 \cdot 10^{20}$            | 5.08          |                                       |
| 6            | 300                | "            | 185          | $3.6 \cdot 10^{21}$            | 3.89          |                                       |
| 7            | 100                | "            | "            | $1.2 \cdot 10^{21}$            | 4.22          |                                       |
| 8            | 30                 | "            | "            | $1.6 \cdot 10^{20}$            | 5.22          |                                       |
| 9            | 10                 | "            | "            | $5-8 \cdot 10^{19}$            | 4.74          |                                       |
| 10           | 3                  | "            | "            | ?                              | ?             | nur 2 Blasen                          |
| 11           | 100                | "            | 6.05         | $5.7 \cdot 10^{21}$            | 1.52          |                                       |
| 12           | "                  | "            | 15.25        | $2.8 \cdot 10^{21}$            | 1.90          |                                       |
| 13           | "                  | 973          | "            | $5.2 \cdot 10^{21}$            | 1.60          |                                       |
| 14           | "                  | 1073         | "            | $5.4 \cdot 10^{19}$            | 12.3          |                                       |

2. Zusammenstellung der unter Spannung geglühten Proben  
(Die Heliumkonzentration  $C_{He}$  betrug jeweils 100appm)

| Probe<br>Nr. | $T_a$<br>[K] | $\sigma$<br>[MPa] | $t_R \cdot t_a^*$<br>[h] | $\epsilon_R$<br>[%] | $\rho_b$<br>[m <sup>-3</sup> ] | $r_m$<br>[nm] | Bemerkungen                      |
|--------------|--------------|-------------------|--------------------------|---------------------|--------------------------------|---------------|----------------------------------|
| 35           | 1023         | 105               | 6.08                     | 5.0                 | $6.8 \cdot 10^{20}$            | 2.64          |                                  |
| 36           | "            | 85                | 15.3                     | 3.6                 | $1.0 \cdot 10^{21}$            | 3.90          |                                  |
| 37           | "            | 70                | 185                      | 8.2                 | $2.8 \cdot 10^{20}$            | 6.73          |                                  |
| 38           | "            | 70                | 208                      | 8.8                 | ---                            | --            |                                  |
| 39           | "            | 77                | 63.4                     | 6.8                 | $3.3 \cdot 10^{20}$            | 4.94          |                                  |
| 40           | "            | 63.5              | 1089                     | 12.2                | $1.4 \cdot 10^{20}$            | 8.04          |                                  |
| 41           | "            | 145               | 0.87                     | 5.0                 | $1.2 \cdot 10^{22}$            | 1.3           | Daten nicht in<br>der Auswertung |
| 42           | "            | 40                | (1098)                   | -                   | $6.4 \cdot 10^{19}$            | 9.58          |                                  |
| 46           | "            | 50                | (185)                    | -                   | $1.2 \cdot 10^{21}$            | 3.87          |                                  |
| 63           | "            | 63.5              | (185)                    | -                   | $2.7 \cdot 10^{20}$            | 6.65          |                                  |
| 64           | "            | 63.5              | (15.3)                   | -                   | $9.6 \cdot 10^{20}$            | 2.98          |                                  |
| 65           | "            | 40                | (185)                    | -                   | $1.4 \cdot 10^{21}$            | 3.65          |                                  |
| 67           | "            | 40                | (15.3)                   | -                   | $3.2 \cdot 10^{21}$            | 2.22          |                                  |
| 68           | 1073         | 50                | (185)                    | -                   | $3.6 \cdot 10^{19}$            | 13.7          |                                  |
| 69           | 1023         | 63.5              | (6.08)                   | -                   | $5.0 \cdot 10^{21}$            | 1.91          |                                  |
| 70           | "            | 50                | (185)                    | -                   | $8.8 \cdot 10^{21}$            | 1.57          |                                  |
| 71           | 973          | 50                | (185)                    | -                   | $6.1 \cdot 10^{21}$            | 1.67          |                                  |
| 72           | 1023         | 77                | (15.3)                   | -                   | $2.3 \cdot 10^{21}$            | 2.32          |                                  |
| 73           | "            | 77                | (6.08)                   | -                   | $2.4 \cdot 10^{21}$            | 1.98          |                                  |
| 74           | "            | 130               | 2.38                     | 4.4                 | $5.5 \cdot 10^{21}$            | 1.77          |                                  |
| 75           | "            | 77                | (2.38)                   | -                   | $8.7 \cdot 10^{21}$            | 1.39          |                                  |
| 76           | "            | 63.5              | (2.38)                   | -                   | $1.1 \cdot 10^{22}$            | 1.16          |                                  |

\* Werte für  $t_a$  stehen in Klammern

## Literaturverzeichnis

- /1/ W.N. McElroy und H. Farrar,  
Proc. Radiation Produced Voids in Metals, Albany 1971,  
S. 187
- /2/ G.L. Kulcinski, R.G. Brown, R.G. Lott und P.A. Sanger,  
Nuclear Technology 22 (1974) 20
- /3/ siehe z.B.: M.L. Bleiberg und J.W. Bennett (Hrsg.),  
Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Mate-  
rials, New York 1977
- /4/ H.J. von den Driesch,  
Dissertation T.H. Aachen, Report der KFA Jülich, Jül-1663,  
1980
- /5/ D.J. Reed,  
Rad. Effects 31 (1977) 129
- /6/ D.R. Harries,  
J. Nucl. Mater. 82 (1979) 2
- /7/ Rishi Raj und M.F. Ashby,  
Acta Met. 23 (1975) 653
- /8/ G.W. Greenwood und A. Boltax,  
J. Nucl. Mater. 5 (1962) 234
- /9/ A.J. Markworth,  
Met. Trans. 4 (1973) 2651
- /10/ M.H. Wood,  
J. Nucl. Mater. 82 (1979) 257
- /11/ G.W. Greenwood und M.V. Speight,  
J. Nucl. Mater. 10 (1963) 140

- /12/ M.V. Speight,  
J. Nucl. Mater. 12 (1964) 216
- /13/ E.E. Gruber,  
J. Appl. Phys. 38 (1967) 243
- /14/ F.A. Nichols,  
J. Nucl. Mater. 30 (1969) 143
- /15/ D.R. Olander,  
J. Nucl. Mater. 92 (1980) 163
- /16/ M.E. Gulden,  
J. Nucl. Mater. 23 (1967) 30
- /17/ B.J. Buescher und R.D. Meyer,  
J. Nucl. Mater. 48 (1973) 143
- /18/ C. Baker,  
J. Nucl. Mater. 71 (1977) 91
- /19/ R.S. Barnes und D.J. Mazey,  
Proc. Roy. Soc. A275 (1965) 47
- /20/ S.K. Tyler und P.J. Goodhew,  
J. Nucl. Mater. 92 (1980) 201
- /21/ L.A. Charlott, J.L. Brimhall und D.G. Atteridge,  
J. Nucl. Mater. 66 (1977) 203
- /22/ D. Aitken, P.J. Goodhew und M.B. Waldron,  
Nature Phys. Sci. 244 (1973) 15
- /23/ S.K. Tyler und P.J. Goodhew,  
J. Nucl. Mater. 92 (1980) 201
- /24/ P.J. Goodhew und S.K. Tyler,  
Proc. 11th Symp. Fusion Technology, Oxford (1980) 1275-1280



- /25/ D.N. Braski, H. Schroeder und H. Ullmaier  
J. Nucl. Mater. 83 (1979) 269
- /26/ F.A. Smidt Jr. und A.G. Pieper,  
ASTM STP 570 (1975) 352
- /27/ A.F. Rowcliffe,  
J. Nucl. Mater. 18 (1966) 160
- /28/ G.K. Walker,  
J. Nucl. Mater. 37 (1970) 171
- /29/ D.R. Harries,  
J. Brit. Nucl. Energy Soc. 5 (1966) 74
- /30/ H. Trinkaus,  
private Mitteilung, wird demnächst veröffentlicht
- /31/ B. Weiss und R. Stickler,  
Met. Trans. 3 (1972) 851
- /32/ J.F. Ziegler,  
He Stopping Power and Ranges in All Elemental Matter,  
Vol. 4, Pergamon Press, New York 1977
- /33/ H. Morikawa,  
Report der KFA Jülich, Jül-1290, 1976
- /34/ J.W. Edington,  
Interpretation of Transmission Electron Micrographs,  
Philips Monograph Nr. 3 (1975) S. 67
- /35/ W. Kesternich,  
private Mitteilung
- /36/ K. Matsumoto, T. Kataoka, M. Terasawa, M. Shimada,  
S. Nakahigashi, H. Sakairi und E. Yagi,  
J. Nucl. Mater. 67 (1977) 97

- /37/ D.K. Matlock und W.D. Nix,  
J. Nucl. Mater. 56 (1975) 145
- /38/ H. Trinkaus und H. Ullmaier,  
Phil. Mag. A 39 (1979) 563
- /39/ M.V. Speight,  
J. Nucl. Mater. 12,2 (1964) 216
- /40/ W.B. Beeré,  
Phil. Mag. 25 (1972) 189
- /41/ H.J. First und M.F. Ashby,  
J. Appl. Phys. 42 (1971) 5273
- /42/ H. Trinkaus,  
private Mitteilung, wird demnächst in J. Nucl. Mater.  
veröffentlicht
- /43/ A.A. Sagués, H. Schroeder, W. Kesternich und H. Ullmaier,  
J. Nucl. Mater. 78 (1978) 289
- /44/ J.E. Harris,  
J. Nucl. Mater. 59 (1976) 303
- /45/ siehe z.B.: R.E. Reed-Hill,  
Physical Metallurgy Principles, 2. Aufl., New York,  
1973, S. 853
- /46/ J. Rothaut und H. Schroeder,  
unveröffentlichte Ergebnisse
- /47/ V. Philipps,  
Diss. T.H. Aachen, Report der KFA-Jülich, Jül-1679,  
1980
- /48/ C.F. Clement und M.H. Wood,  
J. Nucl. Mater. 89 (1980) 1

- /49/ K.C. Russell,  
Acta Met. 26 (1978) 1615
- /50/ S.H. Goods und L.M. Brown,  
Acta Met. 27 (1979) 1
- /51/ A.J. Ardell,  
Mechanism of Phase Transformations in Crystalline  
Solids, Institute of Metals, London 1969, S. 111
- /52/ P.J. Goodhew und S.K. Tyler  
Proc. Roy. Soc. A377 (1981) 151
- /53/ R.B. McLellan und B. Rese,  
Solution Thermodynamics, Treatise on Materials Science  
and Tecnology, Vol. 5, Academic Press, 1974
- /54/ K. Maier, G. Rein, B. Saile, P. Valenta und H.E. Schäfer,  
Proc. 5th Int. Conf. Pos. Ann., Japan 1979, S. 101
- /55/ L.C. Smedskjaer, M.J. Fluss, D.G. Legnini, M.K. Chason  
und R.W. Siegel,  
J. Phys. F: Metal Phys. 11 (1981) 2221
- /56/ W.D. Wilson und R.A. Johnson,  
Interaction Potentials and the Simulation of Lattice  
Defects, hrsg. von C. Gehlen, J.R. Beeler und R.I. Jaffee,  
New York 1972, S. 375;  
siehe ebenfalls: D.J. Reed,  
Rad. Effects 31 (1977) 129
- /57/ V. Philipps, private Mitteilung
- /58/ H. Trinkaus,  
private Mitteilung

/59/ C. Kittel,  
Einführung in die Festkörperphysik, 3. Aufl.  
München 1973, S. 128

/60/ Metals Reference Book  
hrsg. von G.J. Smithells und E.A. Brandes,  
5. Aufl., London 1978

/61/ F.A. Garner,  
Proc. Symp. on Irradiation Phase Stability,  
Pittsburgh, USA, 1980